

# 日本国特許庁 JAPAN PATENT OFFICE

09.12.03

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 Date of Application:

2002年12月26日

RECEIVED 0'3 FEB 2004

WIPO

PCT

出 願 番 号 Application Number:

特願2002-378489

[ST. 10/C]:

[JP2002-378489]

出 願 人 Applicant(s):

ソニー株式会社

PRIORITY DOCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

特許庁長官 Commissioner, Japan Patent Office 2004年 1月16日







【書類名】 特許願

【整理番号】 0290632202

**平成14年12月26日** 

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 8/02

【発明者】

【住所又は居所】 東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニー株式会社

内

【氏名】 金井 千明

【特許出願人】

【識別番号】 000002185

【氏名又は名称】 ソニー株式会社

【代理人】

【識別番号】 100122884

【弁理士】

【氏名又は名称】 角田 芳末

【電話番号】 03-3343-5821

【選任した代理人】

【識別番号】 100113516

【弁理士】

【氏名又は名称】 磯山 弘信

【電話番号】 03-3343-5821

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 176420

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1



【包括委任状番号】 0206460

【プルーフの要否】 要



【書類名】

明細書

【発明の名称】 燃料ガス湿度制御装置及び燃料電池

【特許請求の範囲】

【請求項1】 燃料ガスが供給される第一の燃料流路又は燃料室と、

燃料ガスが供給される第二の燃料流路又は燃料室と、

前記第一の燃料流路又は燃料室と、前記第二の燃料流路又は燃料室とを分離す る、水及び/又は水蒸気を通すが燃料ガスを通さない水分搬送体と、

からなることを特徴とする燃料ガス湿度制御装置。

【請求項2】 前記水分搬送体は、ポリマー、多孔質セラミックスであることを 特徴とする請求項1 に記載の燃料ガス湿度制御装置。

【請求項3】 前記ポリマーは、パーフルオロスルホン酸系ポリマーを含むこと を特徴とする請求項2に記載の燃料ガス湿度制御装置。

【請求項4】 前記第一の燃料流路又は燃料室と、前記第二の燃料流路又は燃料 室とが導通していることを特徴とする請求項1 に記載の燃料ガス湿度制御装置。

【請求項5】 前記第一の燃料流路又は燃料室と、前記第二の燃料流路又は燃料 室とが導通していないことを特徴とする請求項1 に記載の燃料ガス湿度制御装置

燃料が供給される燃料電極側セパレータと、酸化剤が供給される 【請求項6】 酸化剤電極側セパレータと、前記燃料電極側セパレータと前記酸化剤電極側セパ レータとの間に挟持された高分子電解質膜電極接合体と、を有する1個又は2個 以上の発電セルと、

前記燃料が供給される燃料室又は燃料流路に組み込まれた1個又は2個以上の 燃料ガス湿度制御装置と、を備え、

前記燃料ガス湿度制御装置は、燃料ガスが供給される第一の燃料流路又は燃料 室と、燃料ガスが供給される第二の燃料流路又は燃料室と、前記第一の燃料流路 又は燃料室と前記第二の燃料流路又は燃料室とを分離する、水及び/又は水蒸気 を通すが燃料ガスを通さない水分搬送体と、

からなることを特徴とする燃料電池。

【請求項7】 前記水分搬送体は、ポリマー、多孔質セラミックスであることを



特徴とする請求項6に記載の燃料電池。

【請求項8】 前記ポリマーは、パーフルオロスルホン酸系ポリマーを含むことを特徴とする請求項7に記載の燃料電池。

【請求項9】 前記第一の燃料流路又は燃料室と、前記第二の燃料流路又は燃料室とが導通していることを特徴とする請求項6に記載の燃料電池。

【請求項10】 前記第一の燃料流路又は燃料室と、前記第二の燃料流路又は燃料室とが導通していないことを特徴とする請求項6に記載の燃料電池。

## 【発明の詳細な説明】

### [0001]

## 【発明の属する技術分野】

本発明は、水素を含む燃料ガスを用いて連続して発電するようにした燃料電池及び、その燃料電池の制御、運転、維持管理等のために用いられる燃料ガス湿度・制御装置(例えば、加湿・除湿装置、湿度センサ、減圧レギュレータ、昇圧コンプレッサ、流量コントローラ等)に関するものである。

### [0002]

## 【従来の技術】

従来の燃料電池としては、例えば、ノート型パソコン等のポータブル機器に搭載するための電源システムであって、燃料として水素を用い、空気を酸化剤とする超小型の固体高分子型燃料電池を用いた機器搭載用燃料電池装置がある(特許文献1)。

## [0003]

この特許文献1に記載された機器搭載用燃料電池装置は、水素と空気を用いて発電する燃料電池本体と、この燃料電池本体に供給する水素を貯蔵するための水素吸蔵ボンベと、この水素吸蔵ボンベを着脱可能な手段と、空気を供給するための手段と、発電により生成した水を回収する構成と、上記燃料電池本体に供給する水素を加湿する手段と、発電動作を制御する制御部と、これらを一体的に収納し、空気の吸排気口ならびに機器と電気的に結合する端子部を備えたケースとを有することを特徴としている。この燃料電池装置によれば、ポータブル機器に着脱自在に搭載することによって新しい電源システムを提供することができ、従来



の電池にはない長時間の作動を可能とすると共に、燃料の補給により繰り返し利 用することができる。

### [0004]

また、従来の燃料電池としては、例えば、特開2002-100384号公報 (特許文献2) に記載されているようなものがある。この特許文献2には、燃料 電池及びこれに好適に用いられる水蒸気透過膜に関するものが記載されている。

#### [0005]

この特許文献 2 に記載された燃料電池は、電池反応を行う電池部と、電池部へ供給する原料気体を加湿する加湿部とを備え、前記電池部は、固体高分子電解質膜とその両側に配置された電極とからなる電池セルを有するものであり、前記加湿部は、原料気体が導入される原料気体用流路と、電池部からの排出気体が導入される排出気体用流路と、これらの流路を分離する水蒸気透過膜とで構成され、排出気体に含まれる水蒸気を、水蒸気透過膜を透過させて排出気体用流路から原料気体用流路内に入れ、この水蒸気と原料気体用流路内の原料ガスとを接触させることにより原料ガスを加湿するものである燃料電池において、前記水蒸気透過膜は、カルボキシル基の金属塩を官能基として有する繰り返し単位を70重量%以上有する水溶性高分子が、架橋剤で架橋されている物質からなる、ことを特徴としている。

## [000,6]

更に、従来の燃料電池としては、特開2002-117878号公報(特許文献3)に記載されているようなものもある。この特許文献3には、燃料電池及び燃料電池に供給する原料ガスを加湿するのに好適に用いられる水蒸気透過膜に関するものが記載されている。

## [0007]

この特許文献3に記載された燃料電池は、電池反応を行う電池部と、電池部へ供給する原料気体を加湿する加湿部とを備え、前記電池部は、固体高分子電解質膜とその両側に配置された電極とからなる電池セルを有するものであり、前記加湿部は、原料気体が導入される原料気体用流路と、電池部からの排出気体が導入される排出気体用流路と、これらの流路を分離する水蒸気透過膜とで構成され、



排出気体に含まれる水蒸気を、水蒸気透過膜を透過させて排出気体用流路から原料気体用流路内に入れ、この水蒸気と原料気体用流路内の原料ガスとを接触させることにより原料ガスを加湿するものである燃料電池において、前記水蒸気透過膜は、高分子樹脂多孔膜の表面に硬化したパーフルオロスルホン酸系イオン交換樹脂からなる透湿性樹脂層を設けた、ことを特徴としている。

## [0008]

また、本出願人は、例えば、図21に示すような構成の燃料電池を開発した。この図21に示す燃料電池は、発電部に燃料ガスを供給することによって電力を発生させる装置であり、4個の発電セル1,2,3及び4によって構成されている。4個の発電セル1~4は、燃料である水素及びその水素と化学反応させる酸素(空気)の供給路に関して直列に接続されるように構成されている。4個の発電セル1~4は同一の構成を有しており、その構成を、第4の発電セル4を例にとって説明する。

## [0009]

発電セル4は、上下両面に触媒が担持された高分子電解質膜電極接合体5と、この高分子電解質膜電極接合体5の一面側に配置された酸化剤電極側セパレータ6と、高分子電解質膜電極接合体5の他面側に配置された燃料電極側セパレータ7とを備えて構成されている。そして、高分子電解質膜電極接合体5と各セパレータ6,7との間には、それぞれ電極8,9が介在され、これらを締め付けて一体化させることによって発電セル4が構成されている。酸化剤電極側セパレータ6には、酸素、空気等の酸化剤を取り入れる酸化剤供給口6aが設けられている。また、燃料電極側セパレータ7には、燃料である水素が流通される複数の溝が形成されている。

# [0010]

このような構成を有する燃料電池によれば、例えば、次のようにして発電が行われる。燃料の水素ガスが燃料電極側セパレータ 7 に供給され、酸化剤の空気が酸化剤電極側セパレータ 6 に供給される。燃料の水素ガス( $H_2$ )が送られてくると、高分子電解質膜電極接合体 5 の触媒に水素( $H_2$ )が接触して電子( $e^-$ )が飛び出し、プロトン( $H^+$ )が発生する( $H_2 \rightarrow 2 \ H^+ + 2 \ e^-$ )。このプ



ロトン(H+)が高分子電解質膜の中を通り抜けて反対側に移動する。その反対側では、送られてきた空気中の酸素が触媒の力で、プロトン(H+)及び仕事を終えて戻ってきた電子( $e^-$ )と反応して水になる( $O_2$  + 4 H+ + 4  $e^-$  → 2 H<sub>2</sub> O)。

### [0011]

この化学反応により、高分子電解質膜電極接合体5の酸化剤電極側セパレータ 6側には水が次々に生成される。この水が高分子電解質膜電極接合体5の触媒や ガス拡散層を覆うと、酸素が水の被膜によって中に入り込むことができなくなる。その結果、水素と酸素を供給し続けることにより継続される発電が行われなくなるため、生成された前記水は外部に排水する必要がある。

#### [0012]

一方、固体高分子型燃料電池(PEFC)では、プロトン伝導膜のプロトン伝導物質が水(以下「搬送水」という。)であるため、搬送水が無い乾燥した状態ではプロトンの移動は行われない。そのため、プロトン伝導膜では適切な水分管理が必要になる。更に、PEFCのプロトン伝導膜は、カソード側で生成された水分をアノード側へ移動するようになっているが、条件によってはアノード側が水分過多の状態になるため、カソード側と同様に、アノード側の水分管理も重要になる。

## [0013]

なお、図21に示す符号10a,10b,10c,10d及び10eは、第一の発電セル1より供給されて第4の発電セル4から排出される水素の流量を示している。符号10aは、供給される水素の流量が100%の状態にあることを示しており、符号10bは、第一の発電セル1で消費された水素量を除いた水素流量を表している。更に、符合10cは、第二の発電セル2で消費された水素量を除いた水素流量を表しており、符合10dは、同じく第3の発電セル3で消費された水素量を除いた水素流量を表している。そして、符号10eは、第4の発電セル4で消費された水素量を除いた水素流量を表しており、残りの水素が第4の発電セル4で消費された水素量を除いた水素流量を表しており、残りの水素が第4の発電セル4から大気中に放出される。符号11は、第4の発電セル4に設けられた水素流路用のストップ弁である。



#### [0014]

#### 【特許文献1】

特開平9-213359号公報(第3~4、図19)

#### 【特許文献2】

特開2002-100384号公報(第5~7頁、図1)

#### 【特許文献3】

特開2002-117878号公報 (第4~5頁、図1)

### [0015]

### 【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、上述した特許文献1には、燃料電池本体で生成された水を回収 して保水する保水手段を備えることが記載されている。この保水手段は、電池装 置ケースの底部に、燃料電池本体の水生成側に密接させてシート状に敷設されて おり、これが水素吸蔵ボンベの下面にも接するように延在されている。この保水 手段の材料は、紙おむつや生理用品などの衛生用品、土壌保水材などの農業園芸 用品等に使用される各種の高吸水性高分子が応用できる、としている。

## [0016]

そのため、保水手段の吸水性が極めて高いことから、保水手段自体の湿度が容易に100%近くまで増加してしまい、水分過剰な状態になり易いばかりでなく、水分の湿度調整を簡単に行うことができない、という課題があった。

## [0017]

また、図21に示した燃料電池では、常温近くでの運転条件下においては、燃料ガスに対する加湿が過剰になり、或いは水分の逆拡散によって湿度が高くなることが多い。そのため、4個の発電セル1~4に対して水素(燃料)をデッドエンドにて供給する場合を考えると、水素と水若しくは水蒸気の分圧特性は、図21において符号12で示すような傾向になる。

#### [0018]

この水素と水等の分圧特性12は、4個の発電セル1~4の燃料ガスの上流端における水素分圧を100%とすると共に、最下端における水及び水蒸気分圧を100%として表したものである。即ち、第一の発電セル1の燃料ガスの供給側





(上流端)では水素の流量が100%であり、その流れに伴い水素の割合が徐々 に減少して、第4の発電セル4の排出側(下流端)では水素の流量が0%(これ と反対に、水若しくは水蒸気の分圧が100%)となる。

### [0019]

その結果、燃料流路の下流側では、水等の分圧が上がって水素が欠乏した状態 になる。そして、最終的に水素流量が0%となり、触媒やガス拡散層が水の結露 により若しくは水蒸気の拡散が悪いために水素の供給が皆無になると、プロトン が酸素とまったく接触できなくなって発電が不能となる。一方、燃料流路の上流 側では水若しくは水蒸気が皆無となることで、プロトンの伝導に必要な搬送水が 不足することになり、そのため、発電が好ましい状態ではなくなる場合が生ずる

## [0020]

本発明は、このような従来の課題に鑑みてなされたものであり、水のみを通す が燃料は通さない膜を用いて、空気供給路から余分な水分を除き、或いは水分を 調整して加湿や除湿を行うこと等を目的として、水素又は水分の循環を静的若し くは動的に制御することができる燃料ガス湿度制御装置及び、その燃料ガス湿度 制御装置を用いた燃料電池を提供することを目的としている。

### [0021]

# 【課題を解決するための手段】

上述したような課題を解決し、上記目的を達成するために、本出願の請求項1 に記載の燃料ガス湿度制御装置は、燃料ガスが供給される第一の燃料流路又は燃 料室と、燃料ガスが供給される第二の燃料流路又は燃料室と、第一の燃料流路又 は燃料室と、第二の燃料流路又は燃料室とを分離する、水及び/又は水蒸気を通 すが燃料ガスを通さない水分搬送体と、からなることを特徴としている。

# [0022]

本出願の請求項2に記載の燃料ガス湿度制御装置は、水分搬送体は、ポリマー 、多孔質セラミックスであることを特徴としている。

## [0023]

本出願の請求項3に記載の燃料ガス湿度制御装置は、ポリマーは、パーフルオ



ロスルホン酸系ポリマーを含むことを特徴としている。

### [0024]

本出願の請求項4に記載の燃料ガス湿度制御装置は、第一の燃料流路又は燃料室と、第二の燃料流路又は燃料室とが導通していることを特徴としている。

### [0025]

本出願の請求項5に記載の燃料ガス湿度制御装置は、第一の燃料流路又は燃料室と、第二の燃料流路又は燃料室とが導通していないことを特徴としている。

### [0026]

本出願の請求項6に記載の燃料電池は、燃料が供給される燃料電極側セパレータと、酸化剤が供給される酸化剤電極側セパレータと、燃料電極側セパレータと酸化剤電極側セパレータとの間に挟持された高分子電解質膜電極接合体と、を有する1個又は2個以上の発電セルと、燃料が供給される燃料室又は燃料流路に組み込まれた1個又は2個以上の燃料ガス湿度制御装置と、を備え、燃料ガス湿度制御装置は、燃料ガスが供給される第一の燃料流路又は燃料室と、燃料ガスが供給される第一の燃料流路又は燃料室と、燃料ガスが供給される第二の燃料流路又は燃料室と、第一の燃料流路又は燃料室と第二の燃料流路又は燃料室とを分離する、水及び/又は水蒸気を通すが燃料ガスを通さない水分搬送体と、からなることを特徴としている。

# [0027]

本出願の請求項7に記載の燃料電池は、水分搬送体は、ポリマー、多孔質セラミックスであることを特徴としている。

## [0028]

本出願の請求項8に記載の燃料電池は、ポリマーは、パーフルオロスルホン酸系ポリマーを含むことを特徴としている。

# [0029]

本出願の請求項9に記載の燃料電池は、第一の燃料流路又は燃料室と、第二の 燃料流路又は燃料室とが導通していることを特徴としている。

# [0030]

本出願の請求項10に記載の燃料電池は、第一の燃料流路又は燃料室と、第二 の燃料流路又は燃料室とが導通していないことを特徴としている。



#### [0031]

上述のように構成したことにより、本出願の請求項1 に記載の燃料ガス湿度制御装置では、燃料ガス、特に水素が燃料流路又は燃料室に供給されると、水及び/又は水蒸気を通すが燃料ガスを通さない水分搬送体が第一の燃料流路又は燃料室と第二の燃料流路又は燃料室との間に介在されているため、第一の燃料流路又は燃料室と第二の燃料流路又は燃料室内の水及び/又は水蒸気が水分搬送体を介して、それぞれ反対側の燃料流路又は燃料室に透過される。これにより、水及び/又は水蒸気を移動させて水及び/又は水蒸気の制御を行うことができ、燃料流路又は燃料室内の水分量を最適な状態に保つための加湿・除湿装置、湿度センサ、減圧レギュレータ、昇圧コンプレッサ、流量コントローラ等として用いることができる。

## [0032]

本出願の請求項2に記載の燃料ガス湿度制御装置では、水分搬送体としてポリマー、多孔質セラミックスを用いることができ、これらの材料によれば水及び/ 又は水蒸気を、水分搬送体に容易に通過させることができる。

### [0033]

本出願の請求項3に記載の燃料ガス湿度制御装置では、ポリマーがパーフルオロスルホン酸系ポリマーを含むことにより、水及び/又は水蒸気を水分搬送体に確実且つ容易に通過させることができる。

### [0034]

本出願の請求項4に記載の燃料ガス湿度制御装置では、第一の燃料流路又は燃料室と第二の燃料流路又は燃料室とが導通している状態においても、水分搬送体を介して水及び/又は水蒸気を一方から他方へ移動させることができる。

# [0035]

本出願の請求項5に記載の燃料ガス湿度制御装置では、第一の燃料流路又は燃料室と第二の燃料流路又は燃料室とが導通していない状態においても、水分搬送体を介して水及び/又は水蒸気を一方から他方へ移動させることができる。

## [0036]

本出願の請求項6に記載の燃料電池では、燃料電極側セパレータと酸化剤電極



側セパレータと高分子電解質膜電極接合体とを有する1個又は2個以上の発電セルと、燃料ガス湿度制御装置とを備えた燃料電池において、第一の燃料流路又は燃料室とが水分搬送体によって分離されているため、水及び/又は水蒸気のみが水分搬送体を移動し、燃料ガスが水分搬送体を移動することがない。これにより、水及び/又は水蒸気のみを移動させて水及び/又は水蒸気の制御を行うことができ、第一及び第二の燃料流路又は燃料室内の水分量を最適な状態に保つための加湿・除湿装置、湿度センサ、減圧レギュレータ、昇圧コンプレッサ、流量コントローラ等として用いて、発電効率を高めることができる。

## [0037]

本出願の請求項7に記載の燃料電池では、水分搬送体としてポリマー、多孔質 セラミックスを用いることができ、これらの材料によれば水及び/又は水蒸気を 、水分搬送体に容易に通過させることができるため、水及び/又は水蒸気の湿度 調整が容易となり、発電効率を高めることができる。

### [0038]

本出願の請求項8に記載の燃料電池では、ポリマーがパーフルオロスルホン酸系ポリマーを含むことにより、水及び/又は水蒸気を水分搬送体に確実且つ容易に通過させることができ、燃料流路又は燃焼室内を除湿したり、加湿したりして、発電効率をより向上させることができる。

### [0039]

本出願の請求項9に記載の燃料電池では、第一の燃料流路又は燃料室と第二の燃料流路又は燃料室とが導通している状態においても、水分搬送体を介して水及び/又は水蒸気を一方から他方へ移動させることができる。

# [0040]

本出願の請求項10に記載の燃料電池では、第一の燃料流路又は燃料室と第二の燃料流路又は燃料室とが導通していない状態においても、水分搬送体を介して水及び/又は水蒸気を一方から他方へ移動させることができる。

# [0041]

# 【発明の実施の形態】



以下、本発明の実施の形態を、添付図面を参照して説明する。図1乃至図20 は、本発明の実施の例を示すものである。即ち、図1は本発明の第一の実施例の 概略構成を示す説明図、図2は同じく第一の実施例の組立状態の概略構成を示す 説明図、図3は同じく第一の実施例の組立状態の配管構成の他の例の概略構成を 示す説明図、図4は本発明の第二の実施例の概略構成を示す説明図、図5は本発 明の第3の実施例の概略構成を示す説明図、図6は本発明の第4の実施例の原理 説明図、図7は本発明の第4の実施例の概略構成を示す説明図、図8は図7の変 形実施例を示す説明図、図9は本発明の第5の実施例の原理説明図である。

## [0042]

また、図10A,B、図11A,B、図12、図13A,B、図14A,B、図15A,B及び図16A,Bは発電セルとプロトンポンプの関係をそれぞれ説明する説明図、図17A,Bは水素湿度と水素流路との関係を説明するグラフ、図18は本発明に係る燃料電池の出力特性を示すものでセル電圧(V)と時間(sec)との関係を示すグラフ、図19は同じくセル電圧(V)と時間(sec)と抵抗( $\Omega$ )との関係を示すグラフ、図20は同じくセル電圧(V)と時間(sec)との関係を示すグラフである。

# [0043]

本発明の燃料電池は、アノード(陽極)で水素( $H_2$ )をプロトン( $2H^+$ )と電子( $2e^-$ )に分解し、このときに生じる電子の一部を電気として取り出すものである。この際、カソード(陰極)では、酸素( $O_2$ )と電解質膜を移動したプロトン及び外部回路を通ってきた電子とが結合し、水が副産物として生成される。

# [0044]

燃料電池に用いられるプロトン伝導膜がプロトンを移動させるためには水が必要であるので、この生成水を拡散性電極内部に拡散させ、プロトンの伝導率を高めるために積極的に活用されている。その一方、生成水が拡散性電極内部で過剰になると、生成水が酸素の移動を妨げることになり、その結果、燃料電池の発電が阻害されることになる。そのため、燃料電池で安定な発電動作を連続させるためには、プロトン伝導膜の水分を常に一定範囲内に保つことが重要になる。



#### [0045]

また、水素ガス湿度制御装置は、燃料電池に用いられる燃料ガス(特に水素)の湿度を制御するもので、これを大別すると、水及び/又は水蒸気を通すが燃料ガスを通さない水分搬送体と、水分を介在させてプロトンを移動させるプロトンポンプとに分類することができる。ここで、水分搬送体とプロトンポンプを概説すると、次のようなものである。

#### [0046]

水分搬送体は、湿度差による自然拡散を用いて対象物を移動させることを目的とするもので、移動対象物は水分である。この水分搬送体を透過する水分の移動量は、例えば、エアの流量、エアの湿度や温度等を制御することによって調整することができる。また、プロトンポンプは、水素をプロトン経由にて移動すると共に、それに伴う水分の移動を目的とするもので、移動対象物は水素と水分である。このプロトンポンプを透過する水素と水分の移動量は、例えば、高分子電解質膜電極接合体の両面に設けられたガス拡散層間に印加する電圧又は電流を大小変化させることによって調整することができる。

## [0047]

図1に示すように、本発明に係る燃料ガス湿度制御装置の第1の実施例として示すプロトンポンプは、水素流路が直列に接続された4個の発電セル15,16,17及び18のうち、最も下流に位置する第四の発電セル18に組み立てられて一体的に構成されている。

#### [0048]

このうち、第一の発電セル15、第二の発電セル16及び第3の発電セル17の3個の発電セルは、従来例として示した図21の発電セル4と同様の構成を有している。即ち、第一~第三の発電セル15~17は、ともに上下両面に触媒が担持された高分子電解質膜電極接合体5と、この高分子電解質膜電極接合体5の一面側に配置された酸化剤電極側セパレータ6と、高分子電解質膜電極接合体5の他面側に配置された燃料電極側セパレータ7と、高分子電解質膜電極接合体5と各セパレータ6、7との間にそれぞれ介在された電極8、9とを備えて構成されている。



#### [0049]

一方、第四の発電セル18は、図21に示した発電セル4と同様の構成からなる発電部19を有しているが、その発電部19に加えて、水素ガス湿度制御装置の第1の実施例を示すプロトンポンプ部20が組み込まれて一体的に構成され、全体として第四の発電セル18が構成されている。この第四の発電セル18を含む4個の発電セル15~18を、水素が供給される水素供給路を直列に接続して一体化させることにより、4個の発電セル15~18の組み合わせからなる燃料電池14が構成されている。

### [0050]

この燃料電池 14 の第四の発電セル 18 の発電部 19 と第一〜第三の発電セル 15 ~ 17 とは、上述した発電セル 1 ~ 4 の構成と同一であるため、ここでは発電部 19 を代表させて、その構成を簡単に説明する。

### [0051]

発電セル15~18の発電部19は、中央に配置された高分子電解質膜電極接合体22と、この高分子電解質膜電極接合体22の一面側に配置された酸化剤電極側セパレータ23と、高分子電解質膜電極接合体22の他面側に配置された燃料電極側セパレータ24と、2枚の電極25,26を備えて構成されている。両セパレータ23,24で高分子電解質膜電極接合体22及び2枚の電極25,26を挟み込むことによって発電部19(発電セル15~17も同様)が構成されている。

# [0052]

高分子電解質膜電極接合体22は、中央に配置されたプロトン伝導膜と、このプロトン伝導膜の両面に設けられた第一及び第二の触媒との三層構造とされている。プロトン伝導膜は、常温で高い水素イオン伝導性を示す高分子膜であり、例えば、パーフルオロスルホン酸膜、ナフィオン膜(フッ素樹脂系)等を用いることができる。また、第一及び第二の触媒としては、例えば、白金、白金・ルテニウム、或いはカーボン粉に白金等を担持させたもの、その他の触媒を用いることができる。

# [0053]



プロトン伝導膜の特性は、プロトンのみを移動することであるが、プロトンの移動のために水( $H_2$  O)をOH-Hの形で保有し、その-Hを足場として、プロトン(H+)を移動するのが基本である。そのため、プロトン伝導膜は、実際には、プロトンのみを伝導するのではなく、同時に水も透過させることができる。このプロトン伝導膜の水の透過性を利用することにより、ポンプ装置等の外部装置を用いることなく、燃料電池内部の過剰な水分を外部に排出したり、水分の流れる方向、水の流量その他の水分の制御が可能となる。

### [0054]

この高分子電解質膜電極接合体22の第一の触媒側に燃料側の集電板電極25 が配置され、高分子電解質膜電極接合体22の第二の触媒側に酸化剤側の集電板 電極26が配置されている。このように三層構造とされた集電板電極25、高分 子電解質膜電極接合体22及び集電板電極26を、その両面から酸化剤電極側セ パレータ23と燃料電極側セパレータ24とで挟持することにより発電部19が 構成されている。

### [0055]

酸化剤電極側セパレータ23は、矩形をなす薄い平板状の部材からなり、その中央部には、一方の面から他方の面まで貫通する酸素、空気等の酸化剤を取り入れるための酸素取入口27が設けられている。この酸化剤電極側セパレータ23の酸素取入口27の内側に、酸化剤側の集電板電極26が配置されている。この酸素取入口27から大気中の酸素が取り入れられ、その酸素が集電板電極26を介して高分子電解質膜電極接合体22の第二の触媒に供給される。

## [0056]

また、燃料電極側セパレータ24は、矩形をなす薄い板状の部材からなり、その側面には、燃料の一具体例を示す水素が供給される燃料供給口が設けられている。この燃料電極側セパレータ24の両面には、水素を電極と接触させるための水素接触部が設けられている。この水素接触部が燃料供給口と連通されていて、燃料供給口から供給された水素が、内部通路を通って燃料電極側セパレータ24の両面に設けられた水素接触部に放出される。この燃料電極側セパレータ24の発電部19側の面に燃料側の集電板電極25が接触される。



## [0057]

燃料電極側セパレータ24は、プロトンポンプ部20の一方のセパレータである第一のセパレータを兼ねている。尚、第一の発電セル15から第三の発電セル17においては発電部のみで構成されていて、プロトンポンプ部がないため、それらの燃料電極側セパレータ7には、その一面のみに水素接触部が設けられ、他面には燃料ガスが漏れない構造とされている。

### [0058]

第一のセパレータ24を用いて構成されるプロトンポンプ部20は、第一のセパレータ24の他に、第二のセパレータ28と、両セパレータ24,28間に挟持された高分子電解質膜電極接合体29と、2枚の印加電極30,31を備えて構成されている。第二のセパレータ28は、第一のセパレータ24と同様に水素ガスが流通されるもので、戻り配管33の一端が接続されている。この第二のセパレータ28に到達した水素ガス(H<sub>2</sub>)が、戻り配管33を介して上流側の発電セル(この実施例では第一の発電セル15)に戻される構成となっている。

## [0059]

高分子電解質膜電極接合体29は、発電部19の高分子電解質膜電極接合体22と同様の構成とすることができる。この実施例では高分子電解質膜電極接合体29は、高分子電解質膜電極接合体22と同様の構成とされており、中央に配置されたプロトン伝導膜と、このプロトン伝導膜の両面に設けられた第一の触媒及び第二の触媒の三層構造とされている。そして、第一の触媒側に第一の印加電極30が配置され、第二の触媒側に第二の印加電極31が配置されている。

# [0060]

このように三層構造とされた第一の印加電極30、高分子電解質膜電極接合体29及び第二の印加電極31を、その両面から第一のセパレータ24と第二のセパレータ28とで挟持することによりプロトンポンプ部20が構成されている。そして、第一のセパレータ24からプロトンポンプ部20に供給される水素が、第一の印加電極30から高分子電解質膜電極接合体29及び第二の印加電極31を経て第二のセパレータ28に向けて流れるように構成されている。

# [0061]



第一の印加電極 3 0 と第二の印加電極 3 1 は、その正極(+極)及び負極(一極)を変更可能な状態(電圧の印加方向が可変)で互いに電気的に接続されている。この場合、第一の印加電極 3 0 の電圧が第二の印加電極 3 1 の電圧よりも高くなるように電圧を印加すると、水素( $H_2$ )が第一のガス拡散層の触媒と接触して電子(2 e<sup>-</sup>)が飛び出す。これと共に、プロトン(2 H<sup>+</sup>)がプラスイオンであるためマイナス側に引っ張られ、高分子電解質膜電極接合体 2 9 を透過するように移動する。

### [0.062]

このとき、第一のセパレータ30から供給される水素( $H_2$ )は、3個の発電セル15~17を通過してきた後の逆拡散水による水分を十分に含んだウエット水素であり、それ自体が含有する水分によって高分子電解質膜電極接合体29を伝導する際の搬送水の機能が確保されている。そのため、第一の印加電極30側にあるプロトン(2H+)は、搬送水( $H_2$ O)により搬送されて高分子電解質膜電極接合体29を透過し、第二の印加電極31側に容易に移動することができる。そして、第二の印加電極31側に移動したプロトン(2H+)は、電子( $2e^-$ )と反応して水素( $H_2$ )となる( $2H++2e^- \rightarrow H_2$ )。その後、水分を多量に含んだウエット水素( $H_2$ )は、第二のセパレータ28から戻り配管33に流される。

## [0063]

### [0064]

このように、第二のセパレータ28側に多くの水分があり、発電部19に連通された第一のセパレータ24側にある水素が乾いている場合には、水分を多く含



んだ水素(H<sub>2</sub>)を、高分子電解質膜電極接合体29を介して第一のセパレータ24側に戻すことができる。その結果、発電部19に供給される水素の水分を高くすることができ、これにより、ドライ状態で発電部19に供給される水素に対して適度な湿り気を与えることができる。

#### [0065]

このように、プロトンポンプ部20の第一の印加電極30及び第二の印加電極31間における電圧の印可方向を変えることにより、プロトンポンプ部20を正方向と逆方向に移動する割合を調整して、混合後の水素の湿度を決定することができる。即ち、プロトンポンプ部20を透過して第一の印加電極30から第二の印加電極31に移動する水素の水分量を高くしたり、これとは逆に、第二の印加電極31から第一の印加電極30に移動する水素の水分量を高くしたりして、その水分量を自在に調整することが可能となる。

### . [0066]

この場合、プロトンポンプ部 2 0 が第四のセル 1 8 のみに設けられているため、第四のセル 1 8 の発電部 1 9 のみが集中して加湿若しくは除湿されることになる。更に、そのプロトンポンプ部 2 0 に連通された第二のセパレータ 2 8 には戻り配管 3 3 が接続されているため、その戻り配管 3 3 からの水素及び水分の逆流によって影響を受けることになる。

### [0067]

第二のセパレータ28の燃料排出口に一端が接続された戻り配管33内には、プロトンポンプ部20の第二のセパレータ28から排出されたウエット水素若しくは水分を貯蔵しておくことができる水分貯蔵器(リザーバー)34が設けられている。この水分貯蔵器34にはドレン配管35が設けられていて、ドレン配管35の開口側には開閉弁36が取り付けられている。この水分貯蔵器34には、内部に発生した結露を水素と分離させる機能が備えられており、その結露が集まってできた水が開閉弁36を開放することによって大気中に排出される。この水分貯蔵器34で水分が適当に取り除かれた水素が、第一の発電セル15の燃料供給口のある燃料電極側セパレータ7に還流される。

# [0068]



図2は、図1に示した第四の発電セル18の原理確認用の装置を表したものであり、その発電セルの組立状態及びその配管構造等の概略構成を示している。燃料電極側セパレータ(第一のセパレータ)24には水素供給路40が接続されていて、その水素供給路40には、供給される水素の圧力を検出する圧力計41が設けられている。この水素供給路40に供給される水素は、水分を含まないか又は含む水分の少ない、いわゆるドライ水素と呼ばれるものである。また、酸化剤電極側セパレータ23には、大気中の空気が酸素取入口27から供給される。

## [0069]

更に、第二のセパレータ28に一端が接続された戻り配管33の他端が、水素供給路40の圧力計41の下流側に接続されている。この戻り配管33には、第二のセパレータ28から近い順に湿度計43と圧力計44と流量計45と逆止弁46が配設されている。湿度計43は、第二のセパレータ28から水素供給路40に戻される水素の湿度を測定するものである。また、圧力計44は、戻り配管33内の圧力、即ち、第二のセパレータ28から水素供給路40に戻される水素の圧力を測定するものである。

# [0070]

また、流量計45は、戻り配管33内を流れる水素の流量を測定するものである。そして、逆止弁46は、水素供給路40から戻り配管33に向かって水素が流れ込むのを防止するものである。通常、戻り配管33内の水素の圧力は、水素供給路40内の水素の圧力と同等若しくは高いため、水素供給路40内のドライ水素に混ぜて再循環させるように構成されている。

# [0071]

尚、圧力計41、湿度計43、圧力計44、流量計45及び逆止弁46は、あくまでもプロトンポンプの原理を確認するために必要とされるものである。そして、これら圧力計41等の配置、配列は、この実施例のものに限定されるものではない。更に、デバイス装置としての実用に際しては、圧力計41等は必要に応じて用いられるものであって、不要時にはそれぞれ省略することが可能なものである。

# [0072]



この発電セル18の発電部19には発電側電気回路47が形成されている。この発電側電気回路47には、燃料電極側セパレータ24から高分子電解質膜電極接合体22を経て酸化剤電極側セパレータ23に向かう方向に流れる図2において時計方向の電流が発生される。また、発電セル18のプロトンポンプ部20にはポンプ側電気回路48が形成される。このポンプ側電気回路48には、第二のセパレータ24から高分子電解質膜電極接合体29を経て第二のセパレータ28に向かう方向に流れる図2において反時計方向の電流が印加される。

#### [0073]

このポンプ側電気回路48は、プロトンポンプ部20の第一の印加電極30と 第二の印加電極31との間に適当な大きさの電圧を印加できるように構成したことによるものである。更に、ポンプ側電気回路48には、印加される電圧の大きさ及びその電圧の印加方向を変更可能な可変電源49が設けられている。このポンプ側電気回路48では、通常、第一の印加電極30の電位が第二の印加電極31の電位以上に高くなるように電圧を印加させるようにする。これにより、プロトンポンプ部20にポンプ作用が生じ、水分を多く含んだウエット水素を戻り配管33に流すことができる。

## [0074]

これとは反対に、第一の印加電極30の電位が第二の印加電極31の電位よりも低くなるように電圧を印加させると、水分を多く含んだウエット水素が第二のセパレータ28側から第一のセパレータ24側に向かって移動する。これにより、水分を多く含んだウエット水素が、第一のセパレータ24から発電部19に供給され、その水分が発電部19において発電等に利用されて、有効な発電その他の働き(搬送水の役割等)に寄与される。

## [0075]

図3は、図2の回路構成を変形した実施例を示すものであり、図2と同一部分には同一の符号を付している。この実施例では、戻り配管33に変えて迂回配管50を設け、迂回配管50の一端を第二のセパレータ28に接続し、その他端を第一のセパレータ24に接続するように構成されている。迂回配管50には、第二のセパレータ28に近い側から順に圧力計44、湿度計43及び流量計45が



配設されているが、逆止弁は省略されている。この圧力計44等の配置、配列については、これに限定されるものではなく、また、逆止弁を設ける構成としてもよい。このような接続構成とすることによっても、図2の実施例と同様の効果を得ることができる。

#### [0076]

このような構成を有する燃料電池14の作用は、例えば、次のようなものである。図1に示すように、4個の発電セル15~18を、これらに供給される水素の流路を直列に接続する。そして、第一の発電セル15から第二の発電セル16及び第三の発電セル17を介して第四の発電セル18に向けて、燃料としての水素を供給する。尚、燃料としての純水素以外の燃料ガスを使用する場合は、通常、水蒸気改質等を経て水素を発生させるようにする。

## [0077]

このように接続された4個の発電セル15~18に対して燃料としての水素をデッドエンドにて供給した場合、3個の発電セル15~17及び発電セル18の発電部19で逆拡散水が顕著に発生し、これらの水が水素の流れに応じて下流側に押し流されることで水素と水若しくは水蒸気の分圧特性が徐々に変化する(図21の符号12を参照)。この分圧特性の変化は、水分が水の場合と水蒸気の場合とでは異なるが、水として結露すると、その水分は水素ガスの流れに乗りにくいものとなる。

#### [0078]

いま、4 個の発電セル $15\sim18$  において発電電流が等しいものと仮定する。この状態で、水等の分圧特性を水素の流量で考えると、デッドエンドの場合、下流端の水素流量 56 が 0 cc/minであるため、上流端である第一の発電セル15 の水素流量 52 を 100 cc/minとすると、第二の発電セル16 の供給側では水素流量 53 は 75 cc/min、第三の発電セル17 の供給側では水素流量 54 は 50 cc/min、第四の発電セル18 の供給側では水素流量 55 は 25 cc/minとなり、これらの値が妥当な理想値と考えられる。

#### [0079]

このような環境状態において、第一~第三の発電セル15~17及び第四の発



電セル18の発電部19では、例えば、次のようにして発電が行われる。即ち、燃料の水素ガスが燃料電極側セパレータ7若しくは24に供給されると共に、酸化剤の空気が大気中から酸化剤電極側セパレータ6若しくは23に供給される。その結果、燃料の水素ガス( $H_2$ )が高分子電解質膜電極接合体5若しくは22の第一の触媒と接触して電子( $e^-$ )が飛び出し、プロトン( $H^+$ )が発生する( $H_2 \rightarrow 2$   $H^+ + 2$   $e^-$ )。

## [0080]

このプロトン(H+)が高分子電解質膜電極接合体 5 若しくは 2 2 のプロトン 伝導膜を通り抜けて反対側の第二の触媒に向かう。この第二の触媒では、送られてきた空気中の酸素が触媒の力でプロトン(H+)及び仕事を終えて戻ってきた電子( $e^-$ )と反応し、これにより水が生成される( $O_2$  +4  $H^+$  +4  $e^ \to 2$   $H_2$  O)。

## [0081]

この化学反応により、高分子電解質膜電極接合体 5 若しくは 2 2 の酸化剤電極側セパレータ 6 若しくは 2 3 側には水がどんどん生成される。このような水及び逆拡散水の生成過程は、4 個の発電セル 1 5~1 8 において同様に行われるが、上流側の発電セルに供給される水素に逆拡散した水分量よりも下流側の発電セルに供給される水素の水分量が大となる。これは、水素が下流に移動するに伴って逆拡散水も押し流され、第四の発電セル 1 8 において吹き溜まりとなって最大になる(デッドエンドの場合)。そこで、第四の発電セル 1 8 の発電部 1 9 で生成され且つ水分を多く含んだ水素を、プロトンポンプ部 2 0 から排出し、戻り配管3 3 に戻すようにする。

# [0082]

この場合、プロトンポンプ部 200 のポンプ側電気回路 48 では、第一の印加電極 300 電位が第二の印加電極 310 電位以上になるように電圧を印加させる。その結果、第一のセパレータ 24 から供給される水素( $H_2$ )が第一の触媒と接触して電子( $2e^-$ )が飛び出すと共に、プロトン( $2H^+$ )が第一の触媒からプロトン伝導膜を伝導して第二の触媒に向かって移動する。

# [0083]



このとき、第一のセパレータ 24 から供給される水素( $H_2$ )は、上流の 3 個の発電セル  $15\sim17$  を通過する際に水分を吸収して湿度が高められた後のウェット水素であり、その水素自体が十分な水分を含有している。そのため、この水素( $H_2$ )には、それ自体を移動させるに必要な搬送水の機能が確保されている。従って、第一の触媒で発生したプロトン( $2H^+$ )は、プロトン伝導膜を伝導して第二の触媒に向かって容易に移動することができる。

## [0084]

更に、第二の触媒側に移動したプロトン(2H+)は、電子( $2e^-$ )と反応して水素( $H_2$ )となる( $2H++2e^-\to H_2$ )。これにより、水分を多量に含んだ水素( $H_2$ )が生成される。その後、水分を多量に含んだウエット水素は、第二のセパレータ 28 から戻り配管 33 に送られる。戻り配管 33 に送られたウエット水素は、水分貯蔵器 34 に一時的に蓄えられ、一部は水分が十分に高められて結露となり、残部は水分が取り除かれて適度な湿気を有する水素に変換される。

### [0085]

この適度な湿度を有する水素が第一の発電セル15に戻され、新規なドライ水素と混合されて、再び発電に供される。このようなサイクルが連続されることにより、燃料電池14によって連続した発電動作が行われると共に、下流側の発電セル18から十分に水分が含まれた水素を排出させて、発電動作の実行を確保することができる。

#### [0086]

このようなプロトンポンプ部 20 によれば、水素も水も共にポンプすることができるが、その場合に必要とされるエネルギーについて説明する。水素の 1 原子(1/2・ $H_2$ )に対してプロトン(H+)は 1 個であり、このときの電子(e -)は  $1 \times 1$ .  $6 \times 10^{-19}$  [C] であって、この水素のための搬送水(同伴水)は、一般的に  $1 \sim 2$ . 5 個といわれており、ここではそのように仮定する。すると、水素 1 分子( $H_2$ )の場合は、1 原子のときの 2 倍であるため、プロトン(H+)は 2 個となり、電子( $e^-$ )は  $2 \times 1$ .  $6 \times 10^{-19}$  [C] であって、搬送水は  $2 \sim 5$  個である。



### [0087]

これを水素 1 [mo1] に換算すると、プロトン(H+)は  $2\times6.02\times10^{23}$  [C]  $0^{23}$  個となり、電子( $e^-$ )は  $2\times1.6\times10^{-19}\times6.02\times10^{23}$  [C] であって、搬送水は  $2\sim5$  [mo1] である。これを、搬送水の 1 [mo1] に換算すると、電子( $e^-$ )は  $2\times1.6\times10^{-19}\times6.02\times10^{23}\times1/2\sim1/5$  [C]、プロトン(H+)は  $2\times6.02\times10^{23}\times1/2\sim1/5$  個、水素は  $1\times1/2\sim1/5$  [mo1] である。

### [0088]

ここで、1秒当りの水素量を10-6 [mol/s] (=1.34cc/s) とすると、得られる電子量は0.193 [A] であり、このときの搬送水は $5\times10^{-6}$  [mol/s] である。発電セル18においては、1 [A] の電流を得るために必要な水素量は7 [cc/min] となり、このとき生成水は $5.19\times10^{-6}$  [mol/s] が発生する。従って、例えば、全生成水が逆拡散した最悪の状態を仮定した場合でも、プロトンポンプ部20は、極めて低い電圧を用いて、発電電流の $1/2\sim1/5$  の電流で全生成水をプロトンの搬送水として循環させて、湿度の持ち出しを行うことができる。

# [0089]

一般に、1個の発電セルの発電量 [W] は、電流を5 [A] としたとき、電圧が $0.6\sim0.7$  [V] であれば、 $3.0\sim3.5$  Wとなる(例えば、0.6 [V]  $\times 5$  [A] = 3 [W])。

# [0090]

これに対して、プロトンポンプ部 20 の動作に必要な電力量(消費電力)は、電流を 5 [A] として、電圧を 50 [mV] とすると、0.25 [W] となる(50 [mV]  $\times 5$  [A] =0.25 [W])。従って、発電セルで 35 [cc/min]の水素消費があり、プロトンポンプ部 20 で 35 [cc/min]の水素循環がなされた状態で運転されるものとすると、発電セルに対するプロトンポンプの効率は、効率 =3 [W]  $\div 0.25$  [W] = 12 倍となる。

# [0091]

また、発電セルを35 [cc/min] で運転し、そのうち14 [cc/min] を戻



り配管 33から戻すものとして、プロトンポンプ部 20の駆動電流が 2[A]であって、電圧が 20[mV] であるとすると、このときの消費電力は 0.04[W] となる  $(0.02[V] \times 2[A] = 0.04[W]$ )。従って、この場合における、発電セルに対するプロトンポンプの効率は、効率  $= 3[W] \div 0.04[W]$  = 80 倍となる。

#### [0092]

このように、本実施例の発電セル18及び燃料電池14によれば、発電部15で発電された電力の一部をプロトンポンプ部20で消費するが、その消費量は発電量に比べて極めて少ないため(発電電圧0.6又は0.6~0.7 Vに対して、消費電圧0.05 V位)、発電効率の低下を最小限に抑えつつ、発電動作を効率良く継続させることができる。

### [0093]

図17A, Bは、水素湿度と水素流路との関係を説明するグラフである。同図Aにおいて、符号57は、従来の湿度分布を示すものであり、水素流路の上流部では水素密度が高くなっていて、下流部に移動するに従って比例的に水素密度が低くなっている。符号58は、従来の水素の湿度分布に対して、湿度制御による加湿、除湿制御を行った範囲を示すものである。この場合、水素流路の上流部と下流部では水素湿度に相対差があるため、これだけでは好ましいものではないので、符号59に示すように、湿度循環による湿度勾配を平均化するようにする。

## [0094]

図17Bは、本実施例のように水素密度を制御し、湿度循環による湿度勾配を 平均化すると共に、平均化された水素密度(符号59)の湿度分布範囲(符号6 0)を示すものである。このように水素密度の平均化を図ることにより、発電効 率の低下を最小限に抑えつつ、発電動作を効率良く継続させることができる。

## [0095]

しかも、本発明によれば、プロトンポンプ部20は、プロトン伝導膜のドライアップ時(水分が不足した乾燥時)には、一般的に作動しにくいが、水素循環が必要となるのは水素供給路が水によって閉塞されたときであるため、その水によってプロトンポンプを動作させるための湿度を十分に確保することができる。更



に、本実施例のように、発電部19とプロトンポンプ部20を互いに近接させて 設けることにより、発電部19に向かう水素の湿度とプロトンポンプ部20に向 かう水素の湿度を同等レベルに保持することができる。

#### [0096]

その結果、プロトンポンプ部 2 0 の内部抵抗(=印加電圧/電流)を観測することで水素極(燃料極)全体の湿度を同時にセンシングすることができ、これによって湿度センサの役割を果たすことができる。また、上述したように、一対のガス拡散層間における電圧の印加方向を反転させることにより、ポンプ方向を反転させて湿度の高い水素を逆方向に移動させることができる。しかも、ポンプ量(ポンプスピード)は、水素流量を調整することによって自由に設定することができ、プロトンポンプの面積、印加電圧、電流、プロトン伝導膜の材料等とのマッチングを図ることにより、ポンプ効率を高めて最適化を図ることができる。

#### [0097]

また、プロトンポンプによれば、プロトン伝導膜を通じて行われるプロトンの 伝導に加えて、搬送水の移動を促進させることができる(水素と水分の移動)。 更に、水分の移動に関しては、使用箇所によって除湿若しくは加湿の効果を発揮 させることができる。更に又、水素の移動には、その圧力や流量の調整を図ることができ、減圧レギュレータ、昇圧コンプレッサ、或いは流量コントローラとして機能させることもできる。そして、この際の圧力勾配により、循環流の一方化を図り、水素の逆流防止を行うことができる。

#### [0098]

次に、プロトンポンプを発電セルの湿度制御に用いる場合について説明する。いま、戻り配管33をクローズした場合を考えると、プロトンポンプの隔離された水素室は、プロトンポンプのポンプ方向によって減圧され若しくは昇圧されることになる。この減圧・昇圧効果を利用することにより、その圧力に比例して相対湿度を下降させ若しくは上昇させることができる。

## [0099]

即ち、例えば、水素室の圧力を上昇させると、その上昇分だけ相対的に湿度が 高められるため、飽和水蒸気を超過した分を結露として摘出することができ、水



分を積極的に液化させることができる。また、減圧した場合にも同様に、プロトン伝導膜を通した自然拡散を促進することができる。更に、水素室が水分(この場合は、特に液状と仮定する。)で溢れるときには、プロトンポンプのポンピングにより生じた水素圧を利用して、水分のみを発電セルの外部(大気)に排出することが可能となり、水素を無駄に吐き捨てることなく、パージ効率、安全性等を改善することができる。

### [0100]

尚、燃料ガスとしては、純粋の水素のみからなる水素ガスばかりでなく、成分の一部に水素を含む水素混合ガス(例えば、メタン、メタノール、プロパン、ブタン、ガソリン等)を用いることができる。即ち、高圧ボンベや液体水素タンク、水素吸蔵合金等を用いて水素そのものを供給する方法の他、天然ガス(メタン)、メタノール等の既存の炭化水素系燃料を改質して水素リッチな改質ガスを供給する方法等が用いられる。また、酸素の供給も同様であり、空気を供給する方法の他、酸素そのものを供給する方法を用いることもできる。

## [0101]

図4は、本発明の第2の実施例を示すものであり、この実施例に示す燃料電池62は、上述した第一の実施例の水分貯蔵器34に、新たなドライ水素63を供給し、戻り配管33内の水素の状態を調整するように構成したものである。他の構成は、上述した図1の場合と同様であるため、同一部分には同一の符号を付して、それらの説明を省略する。尚、戻り配管33は、この実施例においても前記実施例と同様に、管状の部材を用いて配管として接続する構成として図示したが、配管による接続に限られるものではなく、例えば、セパレータ同士を接合させて戻り管路を形成する等の他の接続構成を含むことは勿論である。

# [0102]

この第2の実施例によれば、予めウエット水素によって適度な湿度が与えられたドライ水素が、4個の発電セル $15\sim18$ のうち第一の発電セル15の燃料供給口に供給される。そのため、4個の発電セル $15\sim18$ の直列とされた水素供給路を通して、略平均化された湿度を有する水素を流通させることができる。

# [0103]



図5は、本発明の第3の実施例を示すものであり、この実施例に示す燃料電池64は、上述した第2の実施例の第一の発電セル15を第四の発電セル18と同一の構成として第一の発電セル15Aを設け、最上流に位置する発電セルにもプロトンポンプ部20を設けたものである。第一の発電セル15Aは第四の発電セル18と同様の構成を有しており、戻り配管33の先端が第一の発電セル15Aに接続されている。燃料電池64の他の構成は、図4に示した第2の実施例と同様であるため、同一部分には同一の符号を付して、それらの説明を省略する。

## [0104]

この第3の実施例では、第四の発電セル18のプロトンポンプ部20から排出されたウエット水素が水分貯蔵器34に供給され、その水素は水分貯蔵器34に供給される新たなドライ水素63と混合される。その混合後の適度に湿度が調整された水素が、第一の発電セル15Aのプロトンポンプ部20の第二のセパレータ28に供給される。この第二のセパレータ28から供給された水素は、プロトンポンプ部20を通過する際に上述したポンプ作用に供される。その後、プロトンポンプ部20を通過した水素の一部が発電部19に移動して上述した発電作用に供される。

# [0105]

一方、プロトンポンプ部20を通過した水素のうち発電部19で消費された分を除く残部は、第一のセパレータ24から第二の発電セル16側に移動する。この水素の一部は第二の発電セル16において発電に供され、その残部が第三の発電セル17に供給される。更に、第三の発電セル17に移動した水素は、その一部が発電に供され、残部が第四の発電セル18に供給される。そして、第四の発電セル18において、上述したように、発電部19による発電作用とプロトンポンプ部20によるポンプ作用とが行われる。

# [0106]

図6は、本発明の燃料電池に係る第4の実施例の原理を説明する図である。この第4の実施例として示す燃料電池65は、発電部66と、水素ガス湿度制御装置の第2の実施例を示す水分搬送体67とで構成したものである。即ち、燃料電池65は、互いに重ね合わされる酸化剤電極側セパレータ68及び燃料電極側セ



パレータ69と、発電部66用の高分子電解質膜であるプロトン伝導膜70と、水分搬送体の一具体例を示すプロトン伝導膜67等を備えて構成されている。

## [0107]

酸化剤電極側セパレータ68及び燃料電極側セパレータ69は、重ね合わせることによって内部に適当な大きさの空間部が形成される部材からなり、その空間部に発電部66用のプロトン伝導膜70が保持されている。これらセパレータ68,69の材質としては、例えば、非伝導性のセラミックスやプラスチック等を適用できることは勿論のこと、伝導性を有するアルミニウム合金、ステンレス合金、或いはカーボン材等を適用することもできる。図6に示す実施例は、酸化剤電極側セパレータ68及び燃料電極側セパレータ69を共に伝導性の材料で形成したものであり、この場合、各セパレータ68,69とプロトン伝導膜70との間には、それぞれ絶縁性のシール部材72を介在させるようにするとよい。

### [0108]

上側に配される酸化剤電極側セパレータ68には、空気が供給される酸素供給口73が設けられている。また、下側に配される燃料電極側セパレータ69には、燃料が供給される水素供給口74が設けられている。更に、燃料電極側セパレータ69の略中央部には、燃料電池65の内部で発生した水分を外部に排出するための水分排出口75が設けられている。この水分排出口75を覆うように燃料電極側セパレータ69の外面には、水分搬送体であるプロトン伝導膜67が接着剤、挟持その他の固着手段によって取り付けられている。

## [0109]

このプロトン伝導膜67は、湿度差による自然拡散を用いて水分を移動させるようにしたもので、表面に接触する水分を吸収し、その水分を保持するのではなく、湿度が低い側に搬送して反対側の面から外部に排出する機能を有するものである。このプロトン伝導膜67は、燃料電極側セパレータ69の内側に取り付ける構成としてもよい。

### [0110]

また、発電部66のプロトン伝導膜70の両面、即ち、酸化剤電極側セパレータ68側の面には触媒層76が設けられ、燃料電極側セパレータ69側の面には



触媒層 7 7が設けられている。各触媒層 7 6, 7 7の材質としては、例えば、白金や白金・ルテニウム等の触媒を用いることができる。更に、各触媒層 7 6, 7 7の外側には、それぞれガス拡散層 7 8, 7 9が設けられている。これらガス拡散層 7 8, 7 9の材質としては、例えば、カーボンクロス、カーボンペーパー等を用いることができる。

#### [0111]

図7は、図6に示した第4の実施例に係る燃料電池65の一実施例の概略構成を示す説明図であり、同一部分には同一の符号を付している。燃料電池65は、上述した2個のセパレータ68,69に加えて第三のセパレータ80を有しており、この第三のセパレータ80と燃料電極側セパレータ69で水分搬送体としてのプロトン伝導膜67が挟持されている。

#### [0112]

更に、第三のセパレータ80には、プロトン伝導膜67を伝導して第三のセパレータ80側に染み出した水分を外部に持ち出すための水分持出用空気が供給される空気供給口81が設けられている。この空気供給口81から注入された水分持出用空気は、第三のセパレータ80とプロトン伝導膜67との間の供給路82を通って外部に取り出される。

#### [0113]

図7に示す符号83は、燃料電極側セパレータ69と第三のセパレータ80との間を封止するシール部材である。また、符号84は、プロトン伝導膜67の両面に設けた補強材である。この補強材84は、例えば、ポーラスな網目状のガーゼのような材料からなり、水分の持ち出し量の調整、或いはシール部材83を用いたことによるプロトン伝導膜67と第三のセパレータ80との間の隙間調整等を目的として用いられている。

#### [0114]

このような構成を有する燃料電池65の作用を概略説明すると、例えば、次のようなものである。図6において、燃料電池65に対して、水素供給口74からアノード側の燃料電極側セパレータ69内に燃料を供給すると共に、酸素供給口73からカソード側の酸化剤電極側セパレータ68内に空気を供給する。これに



より、アノードでは水素( $H_2$ )がプロトン( $2H^+$ )と電子( $2e^-$ )に分離し、カソードでは酸素( $O_2$ )とプロトン伝導膜 70を移動したプロトン( $2H^+$ )及び外部回路を通ってきた電子( $2e^-$ )とが結合される。これにより、発電部 66で発電された電子( $2e^-$ )の一部が電力として取り出される

### [0115]

この際、発電部66の酸化剤電極側セパレータ68内では、酸素( $O_2$ )とプロトン(2 H+ )及び電子(2 e- )が結合することにより、水が生成される(4 H+ +4 e-  $\rightarrow 2$  H $_2$  + $O_2$  = 2 H $_2$  O)。この発電部66で生成された水は、酸化剤電極側セパレータ68側の触媒層76及びプロトン伝導膜70を伝導して燃料電極側セパレータ69側の触媒層77に逆拡散される。そして、触媒層77を通過して燃料電極側セパレータ69側の表面に染み出す。これにより、燃料電極側セパレータ69内部の湿度が高くなり、その水分がガス拡散層79を介して水分搬送体67に伝達される。この場合、排出されるものは、液体としての水ではなく、水蒸気であってもよいことは勿論である。

### [0116]

また、水分搬送体 6 7に伝達された水分は、その内部に染み込んで反対側の面まで伝導され、その面に染み出して外気に接触される。そして、水分の染み出し量が所定量を超えることにより、その水分がまとまって滴となり、外部に放出される。このような水分の伝導が繰り返されることにより、発電部 6 6 で水が連続的に生成される場合にも、その水を外部に連続的に排出することができる。従って、水分搬送体 6 7 を燃料電極側セパレータ 6 9 側に設けることにより、発電時における燃料電池 6 5 内部の湿度を、常に一定の適正な状態に維持することができる。

### [0117]

この場合、図7の実施例では、水分搬送体67に伝導された水分は、これを伝導して第三のセパレータ80上に搬送される。そして、空気供給口81から供給される水分持出し用の空気により、第三のセパレータ80に形成された流路を通って外部に持ち出される。

# [0118]



図8は、図6及び図7に示した第4の実施例に係る燃料電池65を二層構造とした例の概略構成を示す説明図である。この図8において、図6及び図7と同一部分には同一の符号を付して、それらの説明を省略する。燃料電池65は、上述した2個のセパレータ68,69,87に加えて2個の中間セパレータ94,95を有している。酸化剤電極側セパレータを兼ねる第一の中間セパレータ94は燃料電極側セパレータ69の下側に配置され、第一の中間セパレータ94の下側に第二の中間セパレータ95が配置されている。第二の中間セパレータ95は燃料電極側セパレータ95が配置されている。第二の中間セパレータ95の下側に第三のセパレータ87が配置されている。

#### [0119]

また、酸化剤電極側セパレータ68と燃料電極側セパレータ69との間に第一の発電部66が配設され、燃料電極側セパレータ69と第一の中間セパレータ94との間に第一の水分搬送体67が配設されている。更に、第一の中間セパレータ94と第二の中間セパレータ95との間に第二の発電部96が配設され、第二の中間セパレータ95と第三のセパレータ87との間に第二の水分搬送体97が配設されている。そして、第一の中間セパレータ94には、発電用の酸素と水分持出し用の空気を兼ねる空気を供給するための兼用供給口98が設けられている。また、第二の中間セパレータ95には、第二の発電部96に対して燃料ガスである水素を供給するための第二の水素供給口99が設けられている。

#### [0120]

第二の発電部96は第一の発電部66と同様の構成を有するものであり、また、第二の水分搬送体97は第一の水分搬送体67と同様の構成を有するものである。しかしながら、第一の発電部66と第二の発電部96の構成、及び第一の水分搬送体67と第二の水分搬送体97の構成は、共に異なる構造のものであってもよいことは勿論である。また、第一及び第二の中間セパレータ94,95の材質としては、燃料電極側セパレータ69等と同様に、例えば、非伝導性のセラミックスやプラスチック等を適用できることは勿論のこと、伝導性を有するアルミニウム合金、ステンレス合金等を適用することもできる。

#### [0121]



図8に示すように、発電部及びプロトンポンプ部が複数個積み重ねられた多層構造の燃料電池65の作用を概略説明すると、次のようなものである。第一の発電部66及び第二の発電部96における発電動作は、上述した図8の説明と同様であり、各発電部66及び96において個別に発電が行われ、それぞれで発電された電気が電気回路を介して一まとめにされて外部に取り出される。

## [0122]

この場合、第一の発電部66で発生した余分な水分は、第一の水分搬送体67の働きによって第一の中間セパレータ94側に持ち出され、兼用供給口98から供給される水分持出しを兼ねる発電用の空気と混合されて、第二の発電部96の発電作用に供される。また、第二の発電部96で発生した余分な水分は、第二の水分搬送体97の働きによって第三のセパレータ87側に持ち出される。そして、空気供給口93から供給される水分持出し用の空気により、第三のセパレータ87に形成された流路を通って外部に持ち出される。

## [0123]

次に、図8に示す実施例に基づく試験モデルを製作して行った試験について説明する。この試験は、前記実施例がプロトンポンプを用いて水素側の水分管理をアクチプに行ったのに対し、水分搬送体を用いてパッシブな仕組みとして行ったものということができる。この試験モデルの構造の概略は図8に示す通りであり、2箇所の水分搬送体としてナフィオン膜を使用した。

# [0124]

この試験モデルの発電部で生成された水分は、ナフィオン膜を通して外気と同じ湿度バランスを保つように移動するため、水素供給部に水が溜まることはない。このナフィオン膜と第二の発電部とを重ね合わせ、その間に空気供給路を設けることにより、空気の供給を共用させてスタック構造を構成することができる。また、試験モデルのすべての燃料供給路及び空気供給路の末端部分をクローズしてポンプで燃料及び空気を圧送する機構とすれば、水素側及び空気側の水分持出量を独立して制御することができ、従って、更に精密な湿度制御が可能となる。更に、ナフィオン膜からなる水分搬送体をプロトンポンプに代えて構成することにより、プロトンポンプへの供給電流の量と方向が電気的に制御可能となるため



、より一層精密な湿度制御を行うことができる。

#### [0125]

尚、図8の実施例において、第三のセパレータ87に開口部を設け、その開口部を覆う水分搬送体67から水分を外部に排出する構成としてもよいことは勿論である。また、1個の燃料電池を構成する積層された発電部及び水分搬送体の数は、この実施例に限定されるものではなく、3個以上適当な数を重ね合わせることができるものである。

#### [0126]

図18は、試験モデルにより得られた出力特性を示すグラフであり、縦軸にセル電圧(V)を取り、横軸に時間(sec)を取っている。発電部及び水分搬送体の高分子電解質膜電極接合体(MEA)としては22.5cm2の大きさのものを1枚使用した。試験条件は、3A(アンペア)の電流を連続して流し、室温と同程度となるよう送風ファンで冷却した。その結果、図18では、次のような事項が明らかになった。

### [0127]

図18において、運転直後のt1点からt2点(約250sec)までの電圧変化は、セットアップ時における各種電子機器、部品等の性能が安定するまでの変動によるものである。また、t3点(約1500sec)からt4点までの落ち込みは、測定条件の設定のために生じた電圧変動であり、本試験の計測領域外のものである。この非計測領域(t3点からt4点まで)を除く、計測領域(t2点からt3点まで及びt4点からt5点まで)の全体としては終始安定した電圧出力(約0.62V)が得られた。

### [0128]

図19は、電流4Aで8時間の連続運転を行ったときの最後の約2時間におけるセル電圧と内部抵抗との関係を示すグラフである。この試験は、第一の発電セル (V11, R1)と第二の発電セル (V12, R2)の2個について行った。この電圧 (V) -抵抗 ( $\Omega$ ) グラフによれば、第一の発電セルでは、電圧出力 (V11) は約0.640 Vであり、内部抵抗 (R1) は約0.0170 ( $\Omega$ ) であった。また、第二の発電セルでは、電圧出力 (V12) は約0.634 Vであり、内部



抵抗(R2)は約0.0180(Ω)であった。

### [0129]

この結果から明らかなように、電圧の偏差は $\pm 1\,\mathrm{m\,V}$ 、抵抗値は $0.1\,\mathrm{m\,\Omega}$ に収まっており、安定した運転が維持できていることを確認することができた。この間、水素パージは必要なく、また、燃料供給路等における結露や燃料不足の不具合は発生していなかった。

### [0130]

図20は、上記試験における電流(A)と電圧(V)の関係を示すグラフである。この試験は、第一の発電セル及び第二の発電セルについて、それぞれ2回ずつ試験した。このI-V(電流-電圧)特性のグラフによれば、第一の発電セル(記号●と■)及び第二の発電セル(記号○と□)のいずれにおいても、7アンペア(A)程度の電流まで問題なく出力できることを確認することができた。

### [0131]

また、図9は、本発明の燃料電池に係る第5の実施例の原理を説明する図である。第5の実施例として示す燃料電池85は、発電部66と、燃料ガス湿度制御装置の第1の実施例を示すプロトンポンプ部86と、燃料ガス湿度制御装置の第2の実施例を示す水分搬送体67を備えた構成とされている。即ち、燃料電池85は、互いに重ね合わされる酸化剤電極側セパレータ68、燃料電極側セパレータ69及び第三のセパレータ87と、プロトンポンプ部86用の高分子電解質膜であるプロトン伝導膜67と、水分搬送体の一具体例を示すプロトン伝導膜67等を備えて構成されている。

### [0132]

酸化剤電極側セパレータ68と、燃料電極側セパレータ69と、両セパレータ68,69間に配設された発電部66と、第三のセパレータ87に取り付けられた水分搬送体67と、発電部66のプロトン伝導膜70と酸化剤電極側セパレータ68及び燃料電極側セパレータ69間をシールするシール部材72とは、上述した第4の実施例とそれぞれ同様である。そして、酸化剤電極側セパレータ68には酸素供給口73が設けられ、燃料電極側セパレータ69には水素供給口74が設けられている。



#### [0133]

更に、燃料電極側セパレータ69の水分排出口である内側開口部75にプロトンポンプ部86が設けられている。このプロトンポンプ部86は、発電部66と同様の構成を備えており、高分子電解質膜であるプロトン伝導膜88と、このプロトン伝導膜88の両面に設けられた第一の触媒90及び第二の触媒91を有している。プロトン伝導膜88は内側開口部75を閉じるように燃料電極側セパレータ69の内側に取り付けられており、その一面に配された第一の触媒90が発電に供される燃料ガスの供給されるガス拡散層79に対向され、その他面に配された第二の触媒91が水分持出し用に供される燃料ガスの供給される流路82に対向されている。

### [0134]

また、第三のセパレータ87は、シール部材83を介して燃料電極側セパレータ69と重なり合うように設けられ、3個のセパレータが全体として三層構造とされている。第三のセパレータ87には、水分の排出口である外側開口部92が設けられている。この第三のセパレータ87の内面に、外側開口部92を塞ぐように水分搬送体67が接着剤、挟持その他の固着手段によって取り付けられている。そして、第三のセパレータ87の側部には、プロトンポンプ部86を伝導して第三のセパレータ87側に染み出した水分を外部に持ち出すための水分持出用燃料が供給される供給口93が設けられている。

### [0135]

このような構成を有する燃料電池 85 の作用を概略説明すると、例えば、次のようなものである。図 9 において、燃料電池 85 の水素供給口 74 に対して燃料ガスを供給すると共に、酸素供給口 73 に対して空気を供給する。これにより、燃料電極側セパレータ 69 内のアノード側では水素( $H_2$ )がプロトン(2H+)と電子( $2e^-$ )に分解され、酸化剤電極側セパレータ 68 内のカソード側では酸素( $O_2$ )とプロトン伝導膜 70 を移動したプロトン(2H+)及び外部回路を通ってきた電子( $2e^-$ )とが結合される。これにより、発電部 66 で発電された電子( $2e^-$ )の一部が電力として取り出される

### [0136]



この際、発電部 660 カソード側では、酸素( $O_2$ )とプロトン(2H+)及び電子( $2e^-$ )が結合することにより、水が生成される( $4H++4e^-\to 2H_2+O_2=2H_2$ O)。この発電部 66 で生成された水は、酸化剤電極側セパレータ 68 側の触媒層 76 及びプロトン伝導膜 70 を逆拡散して燃料電極側セパレータ 69 側の触媒層 77 に逆拡散される。そして、その触媒層 77 を通過して燃料電極側セパレータ 69 側の表面に染み出す。これにより、燃料電極側セパレータ 69 内部の湿度が高くなり、その水分がガス拡散層 79 を介してプロトンポンプ部 86 に搬送される。

### [0137]

プロトンポンプ部 8 6 に搬送された水分は、ガス拡散層 7 9 から発電部 6 6 側の触媒層 9 0 内に染み込み、プロトン伝導膜 8 8 を介して反対側の触媒層 9 1 まで搬送される。この場合、プロトンポンプ部 8 6 における電圧の印加方向を変えることにより、水分( $H_2$  O)及びプロトン( $H_1$  )の移動方向を変えることができる。即ち、図示するように、プロトンポンプ部 8 6 の発電部 6 6 側の触媒層 9 0 の電圧を水分搬送体 6 7 側の触媒層 9 1 の電圧よりも高くすることにより、水分( $H_2$  O)及びプロトン( $H_1$  )は、触媒層 9 0( $H_2$  )側から触媒層 9 1( $H_2$  )を可能 1 ( $H_1$  )は、触媒層 9 0( $H_2$  )の態は低くなり、その燃料ガスは乾燥される傾向になる。

### [0138]

これとは逆に、水分搬送体 67 側の触媒層 91 の電圧を発電部 66 側の触媒層 90 の電圧よりも高くすることにより、水分( $H_2$  O)及びプロトン(H+ )は、触媒層 91(+極)側から触媒層 90(-極)側に移動する。このとき、発電 部 66 側の湿度は高くなり、その燃料ガスは湿潤される傾向になる。従って、プロトンポンプ部 86 の電圧の印加方向を制御することにより、水分及びプロトンの移動方向を変更させて発電部 66 における燃料ガスの湿度を自動的に調整することができる。

#### [0139]

このように、プロトンポンプ部86の触媒層91の湿度が高くなり、第三のセパレータ87で囲まれた供給路82内の湿度が高くなると、その水分が水分搬送



体67内に染み込む。そして、水分搬送体67内の湿度がある程度高くなり、外気と接触している表面に水分が染み出し、その染み出し量が所定量を超えることにより、その水分がまとまって滴となり、外部に放出される。

### [0140]

このようなプロトンポンプ部86及び水分搬送体67における水分の伝導が繰り返されることにより、発電部66で水が連続的に生成される場合にも、その湿度を調整して最適な湿度の燃料ガスを発電部66に供給すると共に、余分な水分を外部に排出することができる。このように、本実施例の燃料電池85によれば、プロトンポンプ部86及び水分搬送体67を燃料電極側セパレータ69側に設けたために、発電時における燃料電池85内部の湿度を一定の適正な状態に維持することができ、常に最適な状態で発電動作を連続させることができる。

### [0141]

図10~図16には、上述したような発電部にプロトンポンプ部を組み合わせて構成される発電セルの他の実施例を示す。図10Aは、図1に示した第四の発電セル18と略同様の構成を有するもので、酸化剤電極側セパレータ23の酸素取入れ方式を大気開放式とした実施例である。この発電セル100は、発電部19とプロトンポンプ部20を備えて構成されている。

# [0142]

プロトンポンプ部20の第一のセパレータ24と第二のセパレータ28は、水素を流通させる水素配管120で連通されていて、両セパレータ24,28のどちら側からも他方に対して水素が供給できるようにされている。尚、第二のセパレータ28及び水素配管120については、吸湿性の材料を用いることができ、また、結露トラップ等のように外部に水素を排出できる構造とすることもできる。

### [0143]

図10Bは、図10Aに示した発電セル100の変形例を示すもので、酸化剤電極側の酸素取入れ方式を空気圧送式としたものである。この発電セル101は、酸化剤電極側セパレータ121を有する発電部19Aを備えている。酸化剤電極側セパレータ121の内面には、空気(酸素)が圧送される多数の連通溝12



2が設けられている。他の構成は、発電セル100と同様である。

### [0144]

図11Aに示す発電セル102は、図10Bに示す発電セル101のうち、燃料電極側セパレータ24に上下の電極25,30を貼り合わせる等して一体化させて燃料電極側セパレータ123を構成し、同じく酸化剤電極側セパレータ121に電極26を一体化させて酸化剤電極側セパレータ124を構成し、更に、第二のセパレータ28に電極31を一体化させて第二のセパレータ125を構成したものである。これにより、各セパレータ123,124,125に電極の機能を持たせ、これらのセパレータ123,124,125を介して集電機能や電圧の印加等が行えるように構成されている。

### [0145]

更に、酸化剤電極側セパレータ124の機能に合わせて燃料電極側セパレータ (第一のセパレータ) 123及び第二のセパレータ125を、空気圧送式に適合する構成としている。そして、プロトンポンプ部20の第一のセパレータ123と第二のセパレータ125を水素配管120で連通することにより、両セパレータ123, 125間において互いに水素を流動させることができるようにしている。この実施例によれば、発電セルの部品点数を削減して装置の薄型化、小型化を図ることができる。

### [0146]

図11Bに示す発電セル103は、図10Aに示す発電セル100のうち、燃料電極側セパレータ18とその上下の電極25,30を貼り合わせる等して一体化させて集電板126を構成し、発電セル103の構造の簡略化を図ったものである。集電板126は水素配管120を介して第二のセパレータ28と連通されている。この実施例の場合、燃料ガスである水素は、集電板126及び第二のセパレータ28から発電部19及びプロトンポンプ部20に供給される。

### [0147]

図12に示す発電セル104は、発電部19Aに供給される燃料ガスの湿度制御を、プロトンポンプ部20Aと水分搬送部127の2つの水素ガス湿度制御装置で行うようにしたものである。発電部19Aの下側にプロトンポンプ部20A



が配置され、その下側に水分搬送部127が配置されて、全体として3層構造とされている。この発電セル104では、発電部19Aの高分子電解質膜電極接合体22の湿度調整がプロトンポンプ部20Aによって行われ、更に、プロトンポンプ部20Aの湿度調整が水分搬送部127によって行われる。

### [0148]

更に、プロトンポンプ部20Aは、発電部19Aの燃料電極側セパレータを兼ねる第一の燃料電極側セパレータ24と、第二の燃料電極側セパレータ128と、両セパレータ24,128間に介在された高分子電解質膜電極接合体29及びその上下に配置された電極30,31とから構成されている。そして、第一及び第二の燃料電極側セパレータ24,128は、水素配管120により連通されて水素ガスが移動できるように構成されている。

### [0149]

また、水分搬送部127は、プロトンポンプ部20Aの第二の燃料電極側セパレータ128を兼ねるセパレータ128と、大気が供給されるセパレータ129と、両セパレータ128,129間に介在された水分搬送体130及びその上下に配置された多孔質板131,132とから構成されている。水分搬送体130には触媒が無いため、集電効果がいらないことから多孔質板131,132は必ずしも必要とされるものではない。

#### [0150]

図13〜図16に示す発電セル105,106,107,108,109,1 10,111及び112は、発電部19A,19Bの高分子電解質膜電極接合体 22に対して、プロトンポンプ部137,137A,137B,138の高分子 電解質膜電極接合体139の総面積の比が小さくなるように構成したものである

### [0151]

図13Aに示す発電セル105は、発電部19Bとプロトンポンプ部137とから構成されている。発電部19Bは、酸化剤電極側セパレータ121と、燃料電極側セパレータ135と、高分子電解質膜電極接合体22と、酸化剤電極側セパレータ121と高分子電解質膜電極接合体22との間に介在された電極26と



、高分子電解質膜電極接合体22と燃料電極側セパレータ135との間に介在された電極133とから構成されている。そして、一方の電極133には、高分子電解質膜電極接合体22の触媒層の全面に渡って水素を展開させるために九十九折状に延在された連通溝134が設けられている。

### [0152]

また、プロトンポンプ部137は、燃料電極側セパレータ135を兼ねる第一のセパレータと、第二のセパレータ142とを有し、これらセパレータ135,142間に1個の小型のプロトンポンプ部137が設けられている。プロトンポンプ部137は、高分子電解質膜電極接合体139と、その両面に配置された電極140,141とから構成されている。そして、高分子電解質膜電極接合体139の面積は、発電部19Bの高分子電解質膜電極接合体22の面積に比べて大幅に小さい構成とされている。

### [0153]

このように、発電部19Bの大きさに比べてプロトンポンプ部137の大きさを小さくすることによっても、発電部19Bにおける水素ガスの湿度制御を行うことができる。特に、プロトンポンプ部137を小型に構成する場合には、発電部19Bの任意の場所における湿度制御を集中的に行うことができる。そのため、この実施例によれば、1個の発電部19Bにおいて、例えば、上流側と下流側とで湿度差が大きい場合に、その湿度が高い側のみ(或いは低い側でもよい。)を集中的に湿度制御できるという利点がある。

# [0154]

更に、プロトンポンプ部137は、そのポンプ容量に見合った大きさの高分子電解質膜電極接合体139を有し、その高分子電解質膜電極接合体139は、中央に配置されたプロトン伝導膜と、その上下両面に設けられた触媒層とから構成されている。この高分子電解質膜電極接合体139に対応して、燃料電極側はセパレータ135に、その大きさに見合った大きさを有する水素取入口136が設けられ、第二のセパレータ142には、同様の大きさを有する収納凹部143が設けられている。そして、両セパレータ135,142には、水素取入口136又は収納凹部143と連通される水素供給路がそれぞれ設けられている。



### [0155]

また、第二のセパレータ142には、プロトンポンプ部137でポンプされた湿度の高い水素の逆流を防止するための逆止弁144が設けられている。この実施例によれば、小型のプロトンポンプ部を用いてポンプ作用を行わせることができ、発電効率の低下をより少なくすることができる。尚、逆止弁144は無くてもよい。

### [0156]

図13Bに示す発電セル106は、発電部19Bの高分子電解質膜電極接合体22に比べてプロトンポンプ部137Aの高分子電解質膜電極接合体139が大幅に小さい2個のプロトンポンプを用いて水素ガスの湿度制御を行うようにしたものである。この実施例に示す発電セル106が図13Aに示す発電セル105と異なるところは、高分子電解質膜電極接合体139等が2個に増えたことと、これに対応して、第一のセパレータ135Aに2個の水素取入口136,136を設けると共に、第二のセパレータ142Aに2個の収納凹部143,143を設けた点である。他の構成は、上記実施例と同様である。

### [0157]

図14Aに示す発電セル107は、図13Bに示す発電セル106の下に下部発電部19Cを設けた実施例である。下部発電部19Cは、上部発電部19Bと同様の構成を有しているが、その積層順序が逆に設定されていて、上部発電部19Bを逆さまにした状態で燃料電極側セパレータ135Aの下に配置されている。この実施例では、上下2個の発電部19B,19Cが水素の供給側を中心に上下に対向するように配設されているため、酸化剤側電極も同様に対向させることができる。従って、水素の両側から酸素を供給することにより、水素極の結露を防ぐための保温効果にも役立つという利点がある。

## [0158]

図14Bに示す発電セル108は、図13Bに示す発電セル106のプロトンポンプ部137Bに多数のプロトンポンプを設けた実施例である。これに対応して、第一のセパレータ135Bには同じ数の水素取入口136が設けられ、第二のセパレータ142Bには同じ数の収納凹部143が設けられている。この実施



例では、発電部19Aに対して水素の循環路を随時切り替え可能とすることができ、これにより、発電部19Aにおける随所の湿度制御(除湿及び加湿)を独立に行うことができる。更に、水素供給路の上流、中流及び下流の入れ替えを行うこともできる。

### [0159]

図15A及び図15Bに示す発電セル109、110は、図13Aに示す発電セル106の変形実施例を示すもので、水素ガス湿度制御装置として水分搬送体を用いたものである。水分搬送体は、一例として触媒の無い高分子電解質膜145と、この高分子電解質膜145の両面に配置された多孔質板146,147とから構成されている。他の構成は、図13Aに示す実施例の発電セル106と同様であるため、それらの説明は省略する。尚、図15Aは、水素が燃料電極側セパレータ135から発電部19Bに供給される場合を示している。また、図15Bは、水素が第二のセパレータ142から高分子電解質膜145に供給され、更に、第一のセパレータ135を介して発電部19Bに供給される場合を示している。

### [0160]

図15Aに示す実施例によれば、小型の水分搬送体を用いて水分の自然拡散による水分搬送を行うことができる。従って、発電部18Bで発電された電気を水分調整に用いないため、発電効率の低下を防ぐことができる。また、図15Bに示す実施例によれば、小型の水分搬送体に水素を供給して水分を強制的に拡散させ、積極的な水分搬送を行うことができる。更に、図15A及び図15Bに示す実施例では、触媒がないことによる印加電流がないため、集電板の使用を廃止して構成の簡略化を図ることができるという利点がある。

# [0161]

図16Aに示す発電セル111は、図15Bに示す発電セル110の変形実施例を示すものである。即ち、発電セル110の水分搬送体138の下側に、上述したプロトンポンプ部137が配設され、これらを重ね合わせることによって発電セル111が構成されている。また、図16Bに示す発電セル112は、図13Aに示す発電セル105の変形実施例を示すものである。即ち、発電セル10



5のプロトンポンプ部137の下側に、同様の構成を有する第二のプロトンポンプ部137Cが配設されて、これらを重ね合わせることによって発電セル112が構成されている。

### [0162]

これらの実施例では、発電部19Bに対して、水素と湿度の循環制御を上部の水分搬送体138又はプロトンポンプ部137を用いて行い、更に、その水素の湿度の増減調整を、下部のプロトンポンプ部137又はプロトンポンプ部137 Cで行うようにしている。他の構成は、同図の実施例と同様であるため、それらの説明は省略する。更に、図10~図16に示す実施例において、発電部並びにプロトンポンプ部及び水分搬送体の作用は、図1等で述べたことと同様であるため、ここでの説明は省略する。

### [0163]

以上説明したが、本発明は上記実施の例に限定されるものではなく、例えば、酸化剤としての酸素の供給方法については、上述した大気開放式及び空気圧送式に限定されるものではない。このように、本発明は、その趣旨を逸脱しない範囲で種々に変更できるものである。

### [0164]

### 【発明の効果】

以上説明したように、本出願の請求項1 に記載の燃料ガス湿度制御装置によれば、第一の燃料流路又は燃料室と第二の燃料流路又は燃料室との間に水分搬送体を介在させる構成としたため、燃料ガス、特に水素が燃料流路又は燃料室に供給されると、第一の燃料流路又は燃料室と第二の燃料流路又は燃料室内の水及び/又は水蒸気が水分搬送体を介して、それぞれ反対側の燃料流路又は燃料室に透過される。これにより、水及び/又は水蒸気を移動させて水及び/又は水蒸気の制御を行うことができ、燃料流路又は燃料室内の水分量を最適な状態に保つための加湿・除湿装置、湿度センサ、減圧レギュレータ、昇圧コンプレッサ、流量コントローラ等として用いることができるという効果が得られる。

### [0165]

本出願の請求項2 に記載の燃料ガス湿度制御装置によれば、水分搬送体として



ポリマー、多孔質セラミックスを用いる構成としたため、水及び/又は水蒸気を 水分搬送体に容易に通過させることができるという効果が得られる。

### [0166]

本出願の請求項3に記載の燃料ガス湿度制御装置によれば、ポリマーがパーフルオロスルホン酸系ポリマーを含む構成としたため、水及び/又は水蒸気を水分搬送体に確実且つ容易に通過させることができるという効果が得られる。

### [0167]

本出願の請求項4 に記載の燃料ガス湿度制御装置によれば、第一の燃料流路又は燃料室と第二の燃料流路又は燃料室とが導通している状態においても、水分搬送体を介して水及び/又は水蒸気を一方から他方へ移動させることができるという効果が得られる。

### [0168]

本出願の請求項5 に記載の燃料ガス湿度制御装置によれば、第一の燃料流路又は燃料室と第二の燃料流路又は燃料室とが導通していない状態においても、水分搬送体を介して水及び/又は水蒸気を一方から他方へ移動させることができるという効果が得られる。

# [0169]

本出願の請求項6に記載の燃料電池によれば、燃料電極側セパレータと酸化剤電極側セパレータと高分子電解質膜電極接合体とを有する1個又は2個以上の発電セルと、燃料ガス湿度制御装置とを備えた燃料電池において、第一の燃料流路又は燃料室と第二の燃料流路又は燃料室とを水分搬送体で分離する構成としたため、水及び/又は水蒸気のみが水分搬送体を移動し、燃料ガスが水分搬送体を移動することがない。そのため、水及び/又は水蒸気のみを移動させて水及び/又は水蒸気の制御を行うことができ、第一及び第二の燃料流路又は燃料室内の水分量を最適な状態に保つための加湿・除湿装置、湿度センサ、減圧レギュレータ、昇圧コンプレッサ、流量コントローラ等として用いて、発電効率を高めることができるという効果が得られる。

# [0170]

本出願の請求項7に記載の燃料電池によれば、水分搬送体としてポリマー、多



孔質セラミックスを用いる構成としたため、水及び/又は水蒸気を水分搬送体に容易に通過させることができ、水及び/又は水蒸気の湿度調整が容易となって、 発電効率を高めることができるという効果が得られる。

### [0171]

本出願の請求項8に記載の燃料電池によれば、ポリマーがパーフルオロスルホン酸系ポリマーを含む構成としたため、水及び/又は水蒸気を水分搬送体に確実且つ容易に通過させることができ、燃料流路又は燃焼室内を除湿したり、加湿したりして、発電効率をより向上させることができるという効果が得られる。

### [0172]

本出願の請求項9に記載の燃料電池によれば、第一の燃料流路又は燃料室と第二の燃料流路又は燃料室とが導通している状態においても、水分搬送体を介して水及び/又は水蒸気を一方から他方へ移動させることができるという効果が得られる。

### [0173]

本出願の請求項10に記載の燃料電池によれば、第一の燃料流路又は燃料室と 第二の燃料流路又は燃料室とが導通していない状態においても、水分搬送体を介 して水及び/又は水蒸気を一方から他方へ移動させることができるという効果が 得られる。

### 【図面の簡単な説明】

### 【図1】

本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池の第1の実施例の概略構成を 示す説明図である。

#### 【図2】

本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池の第1の実施例の発電セルに 係る第1の実施例の組立状態の概略構成を示す説明図である。

#### 【図3】

本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池の第1の実施例の発電セルに 係る第2の実施例の組立状態の概略構成を示す説明図である。

### [図4]



本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池の第2の実施例の概略構成を 示す説明図である。

### 【図5】

本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池の第3の実施例の概略構成を 示す説明図である。

### 【図6】

本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池の第4の実施例の原理を説明 するための説明図である。

## 【図7】

本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池の第4の実施例の概略構成を 示す説明図である。

### 【図8】

図7に示す実施例の変形例を示す説明図である。

### [図9]

本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池の第5の実施例の原理を説明 するための説明図である。

### 【図10】

本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池に係る発電セルを示すもので、同図Aは発電セルの第1の実施例の概略構成を示す説明図、同図Bは発電セルの第2の実施例の概略構成を示す説明図である。

### 【図11】

本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池に係る発電セルを示すもので、同図Aは発電セルの第3の実施例の概略構成を示す説明図、同図Bは発電セルの第4の実施例の概略構成を示す説明図である。

### 【図12】

本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池に係る発電セルの第5の実施例の概略構成を示す説明図である。

### 【図13】

本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池に係る発電セルを示すもので



、同図Aは発電セルの第6の実施例の概略構成を示す説明図、同図Bは発電セルの第7の実施例の概略構成を示す説明図である。

### 【図14】

本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池に係る発電セルを示すもので、同図Aは発電セルの第8の実施例の概略構成を示す説明図、同図Bは発電セルの第9の実施例の概略構成を示す説明図である。

### 【図15】

本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池に係る発電セルを示すもので、同図Aは発電セルの第10の実施例の概略構成を示す説明図、同図Bは発電セルの第11の実施例の概略構成を示す説明図である。

## 【図16】

本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池に係る発電セルを示すもので、同図Aは発電セルの第12の実施例の概略構成を示す説明図、同図Bは発電セルの第13の実施例の概略構成を示す説明図である。

### 【図17】

本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池の水素湿度と水素供給路との 関係を説明するグラフである。

### 【図18】

本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池の電圧と時間との関係の出力 特性を示すグラフである。

#### 【図19】

本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池の電圧と内部抵抗との関係の 出力特性を示すグラフである。

### 【図20】

本発明の水素ガス湿度制御装置を用いた燃料電池の電圧と電流との関係の出力 特性を示すグラフである。

#### 【図21】

従来の燃料電池の概略構成を示す説明図である。

### 【符号の説明】

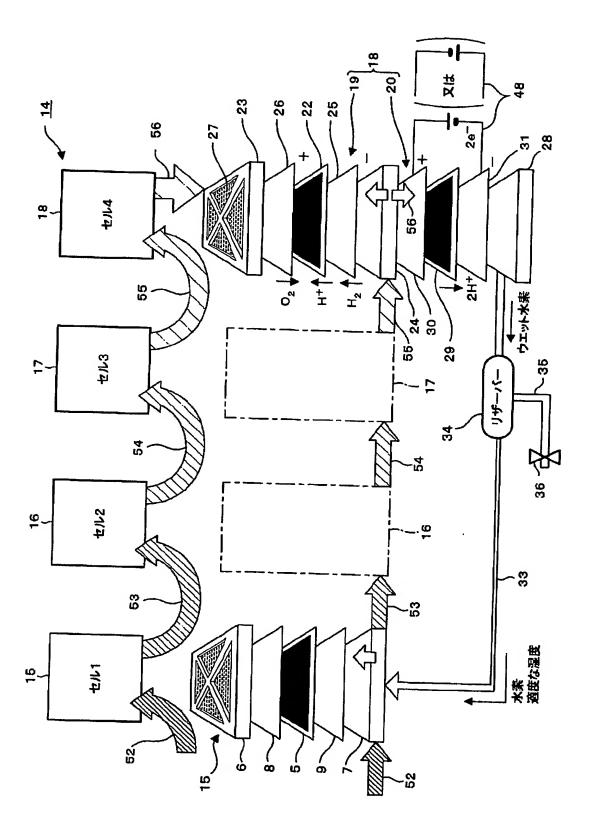


14,62,64,65,85 燃料電池、15,15A,16,17,18,100,101,102,103,104,105,106,107,108,109,110,111,112 発電セル、19,19A,19B,19C,66,96 発電部、20,20A,86,137,137A,137B,137C プロトンポンプ部、22,29,139 高分子電解質膜電極接合体、23,68,121,124 酸化剤電極側セパレータ、24,69,123,128 燃料電極側セパレータ、25,26,30,31,133,140,141 電極、28,80,87,94,95,120,125,129,135,135A,135B,142,142A セパレータ、37戻り配管、34 水分貯蔵器(リザーバー)、47 発電側電気回路、48 ポンプ側電気回路、49 可変電源、67,97,130,138水分搬送体、70,88,130 プロトン伝導膜、73 酸素供給口、74,99 水素供給口、76,77,90,91 触媒、78,79 ガス拡散層、131,132,146,147 多孔質板



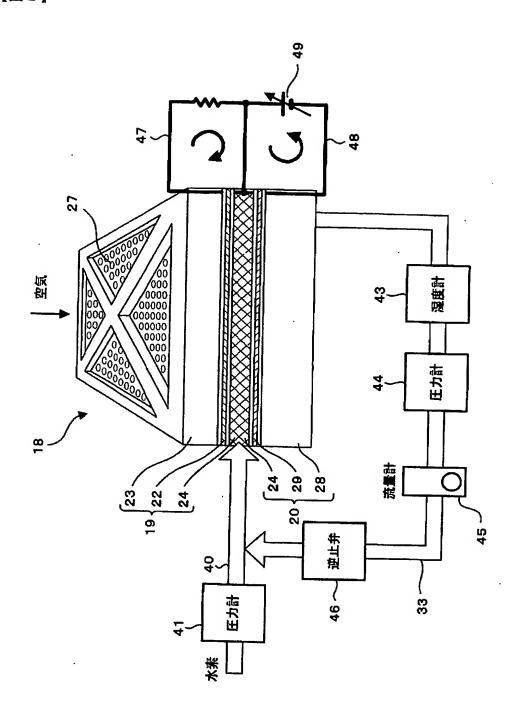
【書類名】 図面

【図1】



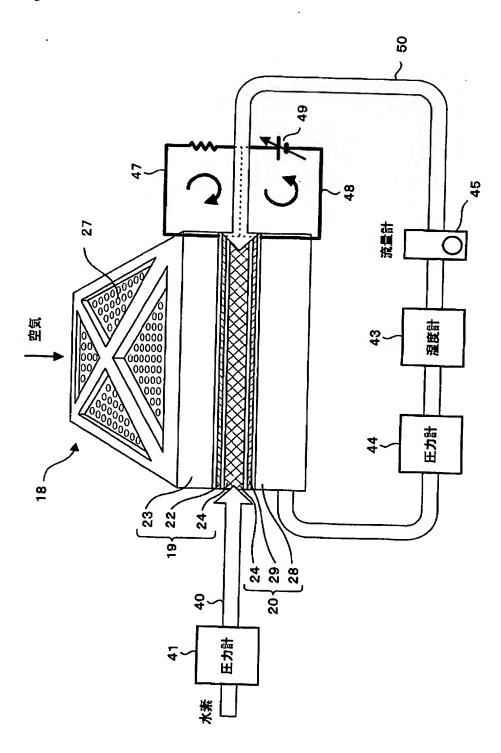


【図2】



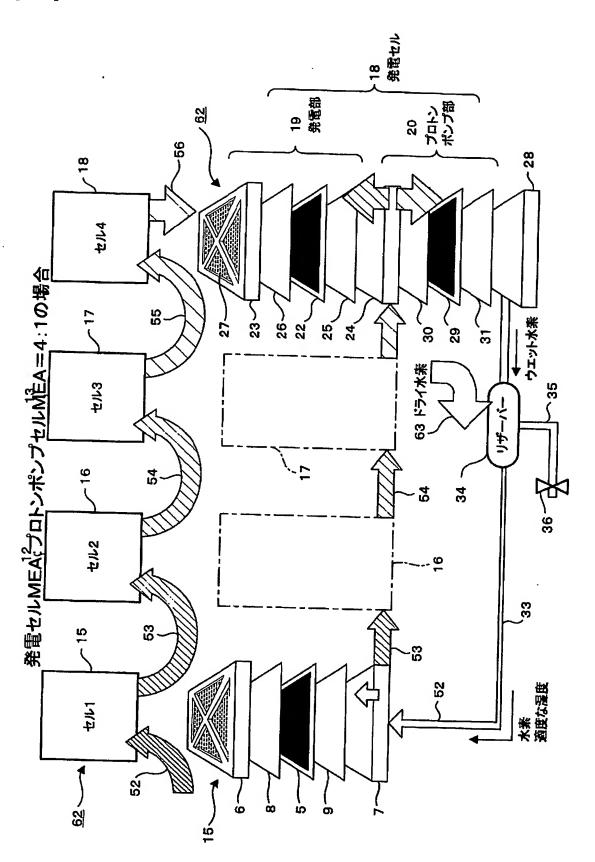


【図3】



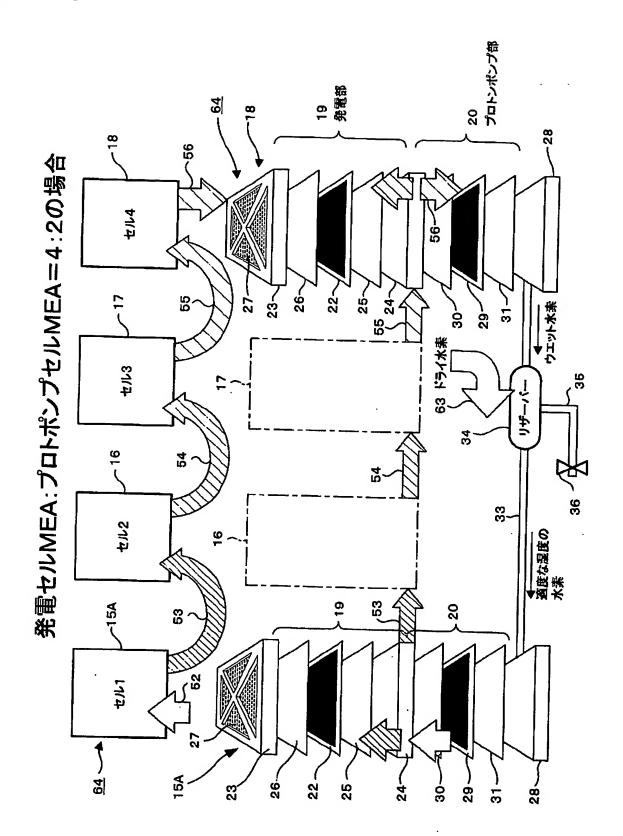


【図4】



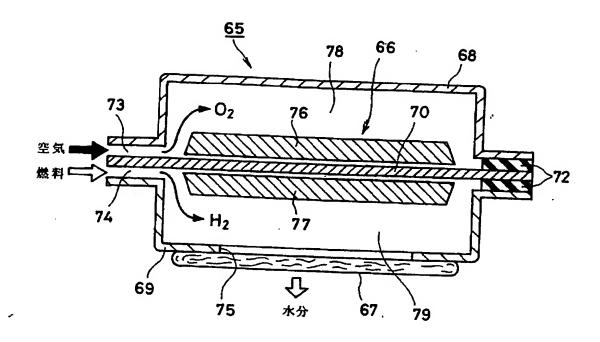


【図5】

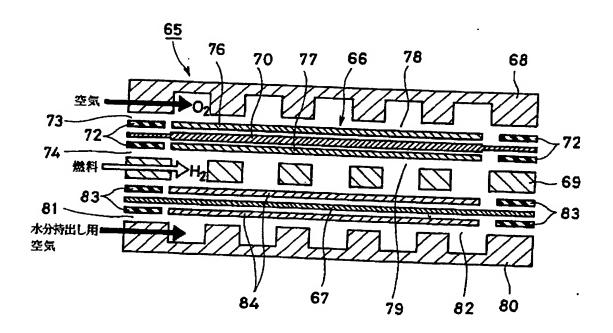




【図6】

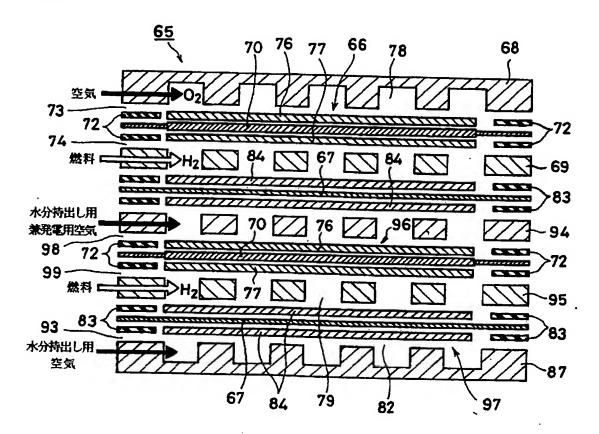


【図7】



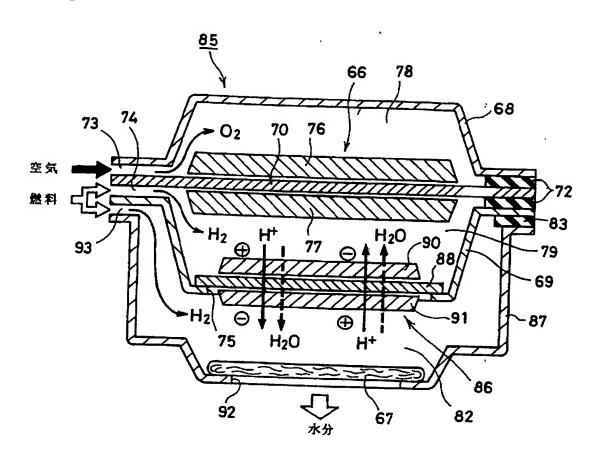


【図8】



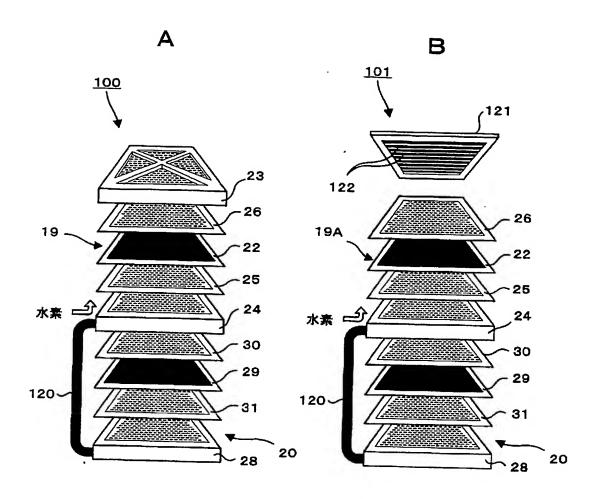


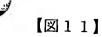
【図9】

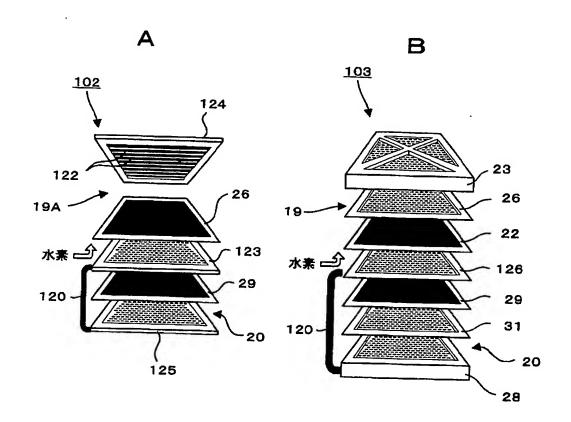




【図10】

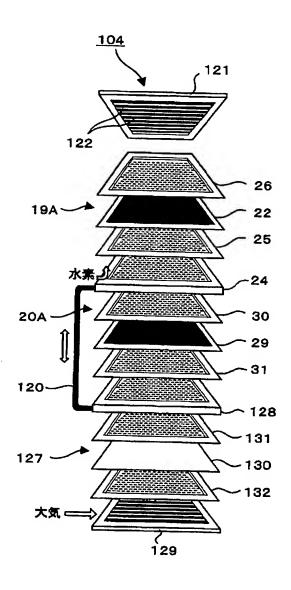






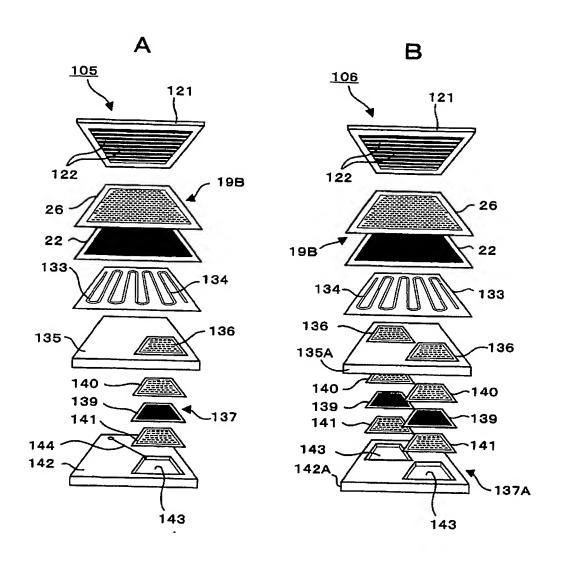


【図12】



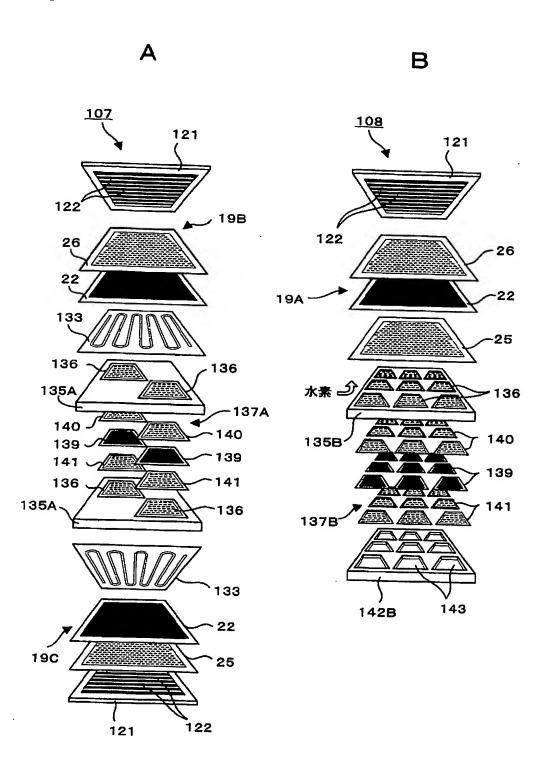


【図13】



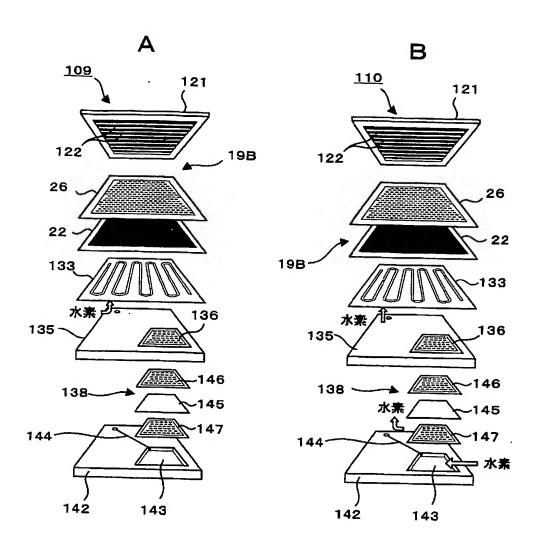


【図14】



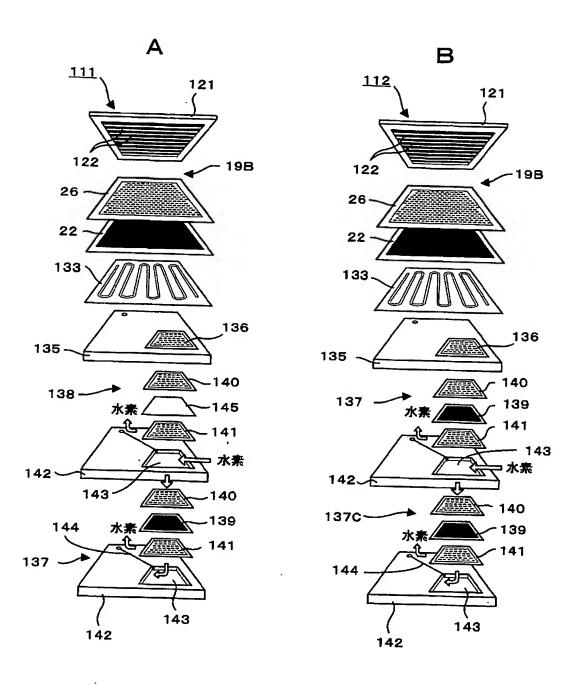


【図15】



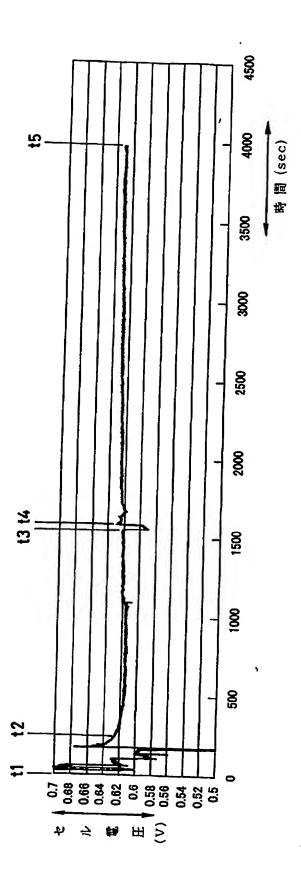


【図16】



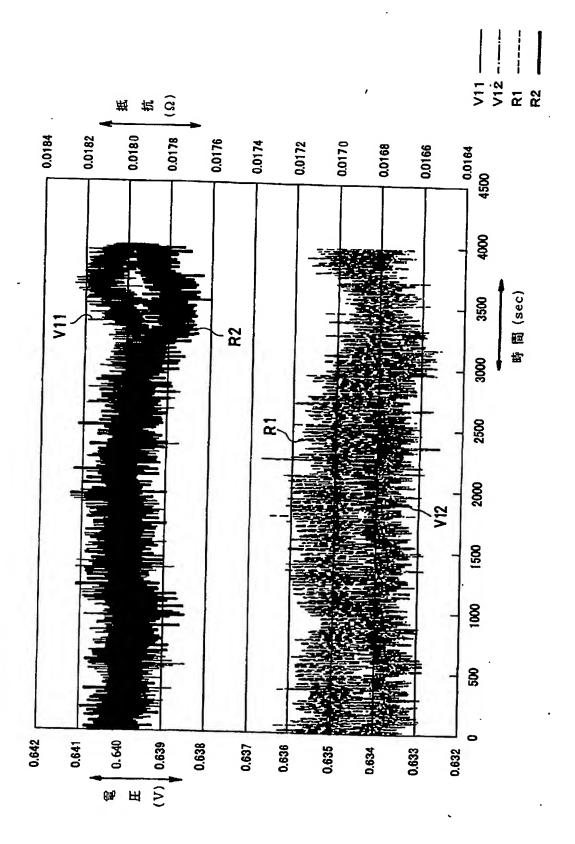


【図18】



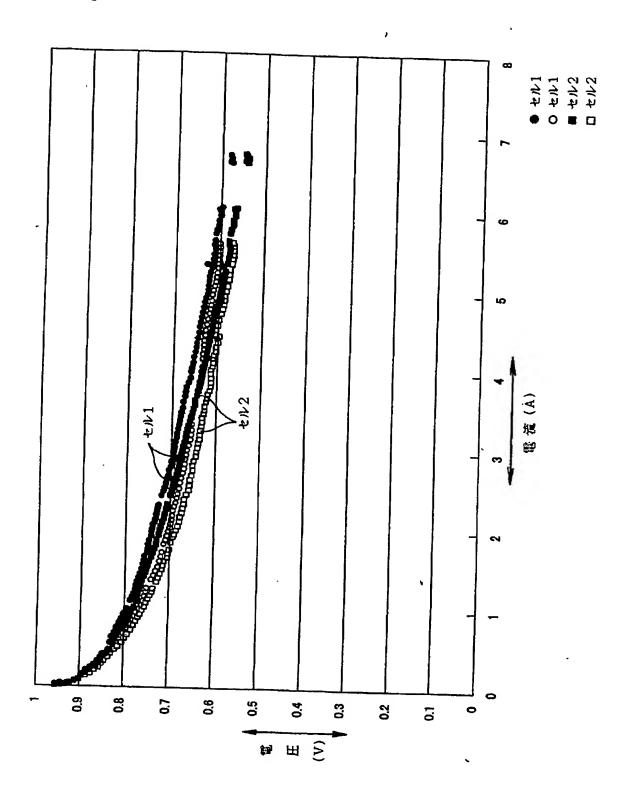


【図19】



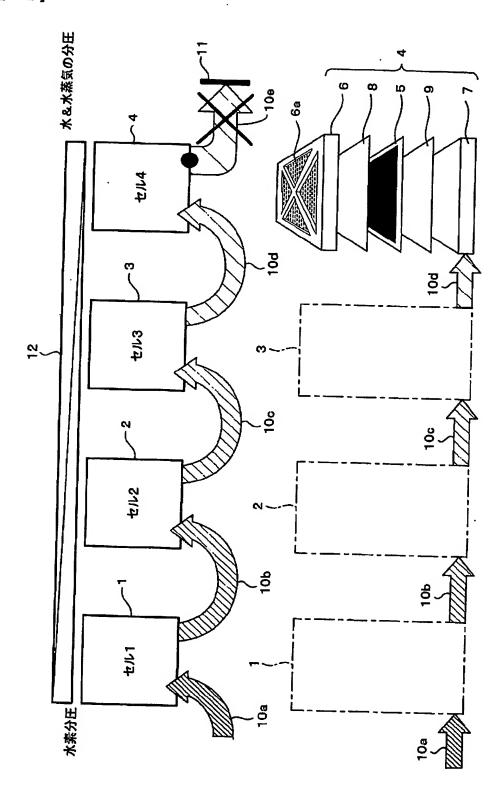


【図20】





【図21】





【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 水のみを通すが燃料は通さない膜を用いて、空気供給路から余分な水分を除き、或いは水分を調整して加湿や除湿を行うことができるようにする。

【解決手段】 燃料ガスが供給される第一の燃料流路又は燃料室と、燃料ガスが供給される第二の燃料流路又は燃料室と、第一の燃料流路又は燃料室と、第二の燃料流路又は燃料室とを分離する、水及び/又は水蒸気を通すが燃料ガスを通さない水分搬送体67と、からなる。

【選択図】 図6





# 認定・付加情報

特許出願の番号 特願2002-378489

受付番号 50201979871

書類名 特許願

担当官 第五担当上席 0094

作成日 平成15年 1月 6日

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】

【識別番号】 000002185

【住所又は居所】 東京都品川区北品川6丁目7番35号

【氏名又は名称】 ソニー株式会社

【代理人】 申請人

【識別番号】 100122884

【住所又は居所】 東京都新宿区西新宿1丁目8番1号 新宿ビル

信友国際特許事務所

【氏名又は名称】 角田 芳末

【選任した代理人】

【識別番号】 100113516

【住所又は居所】 東京都新宿区西新宿1丁目8番1号 新宿ビル

松隈特許事務所

【氏名又は名称】 磯山 弘信



特願2002-378489

# 出願人履歴情報

識別番号

[000002185]

1. 変更年月日 [変更理由]

1990年 8月30日 新規登録

住所氏名

東京都品川区北品川6丁目7番35号

ソニー株式会社